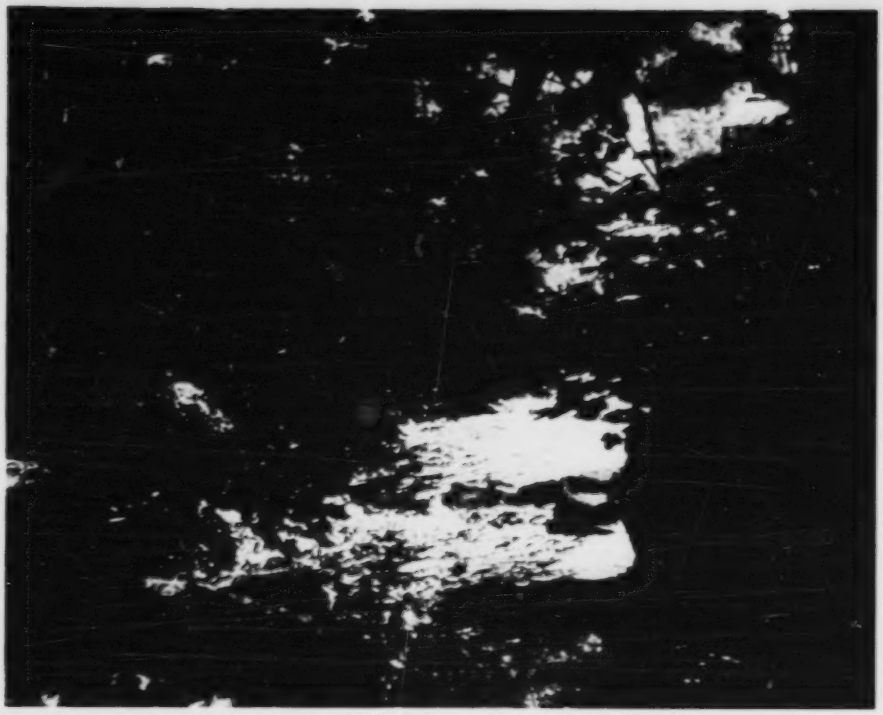
Comité fédéral-provincial de coordination
de la recherche et de la surveillance



RAPPORT CANADIEN D'ÉVALUATION DE 1990 SUR LE TRANSPORT À DISTANCE DES POLLUANTS ATMOSPHÉRIQUES ET SUR LES DÉPÔTS ACIDES

Partie 3

SCIENCES DE L'ATMOSPHÈRE

1990

ACID RAIN

PLUIES ACIDES

Province of British Columbia
Ministry of Environment and Parks

Gouvernement du Québec
Ministère de l'Environnement

Alberta
ENVIRONMENT

New Brunswick
Department of Municipal Affairs and Environment

Saskatchewan
Environment and Public Safety

Community & Cultural Affairs

Manitoba
Environment and Workplace Safety and Health

Nova Scotia
Department of the Environment

Environment Ontario

Province of Newfoundland
Department of the Environment

Canada

91-04755/

March 4, 1991

ERRATUM - 1990 LRTAP ASSESSMENT REPORT

We have discovered an error in Part 3 - Atmospheric Sciences of the 1990 LRTAP Assessment Report. Correction should be made to the units of NO_3^- for 1985-87 of Table 3.2.9 of the total annual deposition integrated over the area shovn in Figure 3.2.31 for eastern North America over the period 1980-1987 found on page 3-71. The unit 4.44 should be amended to read 5.44 (see attached).

ERRATUM - ÉVALUATION 1990 du TADPA

Nous avons découvert une faute dans la Partie 3 - Sciences Atmosphériques de l'Évaluation 1990 du TADPA. Corrigez les unités de NO_3^- pour 1985-87 du Tableau 3.2.9 des dépôts annuels globaux, en MT/année, sur la partie est de l'Amérique du Nord pour la période 1980 à 1987 qu'on trouve à la page 3-80. L'unité 4.44 a changé à 5.44 (voir attaché).

ERRATUM - PAGE 220 et 221

S'il vous plaît, notez que les figures 3A-1 et 3A-2 ont été renversées.

Tableau 3.2.9

Dépôts annuels globaux, en MT/année, sur la partie est de l'Amérique du Nord pour la période 1980 à 1987 (région présentée à la figure 3.2.31)

Les unités sont des millions de tonnes par année

	1980	1981	1982	1983	1984	1985	1986	1987	80-82	85-87
$SO_4^=$	10.68	10.51	10.18	9.20	9.38	8.97	8.57	8.32	10.45	8.62
NO_3^-	6.04	5.36	5.78	5.61	5.83	5.66	5.37	5.27	5.73	5.44

Tableau 3.2.10

Écart type d'estimation des dépôts humides globaux de $SO_4^=$ et de NO_3^- et valeurs des dépôts ±3 écarts types de la moyenne (en début et fin de la période, 1980 à 1987)

	Écart type (σ) (millions de tonnes/année)		Dépôts globaux moyenne ±3σ (millions de tonnes/année)	
	1980	1987	1980	1987
$SO_4^=$	0.082	0.049	10.68±0.25	8.32±0.15
NO_3^-	0.056	0.035	6.04±0.17	5.27±0.10

COMITÉ FÉDÉRAL/PROVINCIAL DE COORDINATION

DE LA RECHERCHE ET DE LA SURVEILLANCE

RAPPORT DE 1990 SUR LE TRANSPORT À DISTANCE DES POLLUANTS ATMOSPHÉRIQUES ET SUR LES DÉPÔTS ACIDES

PARTIE 3

SCIENCES ATMOSPHÉRIQUES

1990

RÉDACTEURS EN CHEF

M.A. Lusis	Direction des ressources atmosphériques, ministère de l'Environnement de l'Ontario
M.L. Phillips	Service de l'environnement atmosphérique, Environnement Canada

AUTEURS ET COLLABORATEURS

L.A. Barrie	Service de l'environnement atmosphérique, Environnement Canada
B.L. Beattie	Service de l'environnement atmosphérique, Environnement Canada
R. Bloxam	Direction des ressources atmosphériques, ministère de l'Environnement de l'Ontario
J. Bottenheim	Service de l'environnement atmosphérique, Environnement Canada
D. Davies	Service de l'environnement atmosphérique, Environnement Canada
M. Ferland	Direction de la météorologie, Environnement Québec
C. Fung	Direction des ressources atmosphériques, ministère de l'Environnement de l'Ontario
P.K. Misra	Direction des ressources atmosphériques, ministère de l'Environnement de l'Ontario
J. Ogden	Département de biologie, Université Dalhousie
M.P. Olson	Service de l'environnement atmosphérique, Environnement Canada
N.W. Reid	Direction des ressources atmosphériques, ministère de l'Environnement de l'Ontario
C.U. Ro	Service de l'environnement atmosphérique, Environnement Canada
A. Sirois	Service de l'environnement atmosphérique, Environnement Canada
W.B. Sukloff	Service de l'environnement atmosphérique, Environnement Canada
P.W. Summers	Service de l'environnement atmosphérique, Environnement Canada
A.J.S. Tang	Direction des ressources atmosphériques, ministère de l'Environnement de l'Ontario

J. Underwood	Environmental Assessment Division, ministère de l'Environnement de la Nouvelle-Écosse
F. Vena	La Conservation et la Protection, Environnement Canada
R.J. Vet	Service de l'environnement atmosphérique, Environnement Canada
D.H. Waller	Technical University of Nova Scotia
D. Yap	Direction des ressources atmosphériques, ministère de l'Environnement de l'Ontario
J.W.S. Young	Service de l'environnement atmosphérique, Environnement Canada

RÉVISEURS DE L'EXTÉRIEUR

D. Derwent	Division des sciences environnementales et médicales, Harwell Laboratory
H. Dovland	Institut norvégien de recherche sur l'air

TABLE DES MATIÈRES

		PAGE
LISTE DES TABLEAUX		3-v
LISTE DES FIGURES		3-viii
RÉSUMÉ		3-1
3.1 INTRODUCTION		3-8
3.2 APERÇU DES RAPPORTS SOURCE-RÉCEPTEUR DES ACIDES ET DE L'OZONE PAR L'EXAMEN DES COMBINAISONS DE PROFILS, DES TENDANCES ET DES DONNÉES CONNEXES		3-11
3.2.1 INTRODUCTION		3-11
3.2.2 ÉMISSIONS ET OBSERVATIONS ATMOSPHÉRIQUES		3-11
3.2.2.a	Émissions	3-16
3.2.2.b	Répartitions de la composition des précipitations et des dépôts acides au Canada	3-29
3.2.2.c	Distributions temporelles et spatiales des concentrations d'anhydride sulfureux, de sulfate et de nitrate dans l'air, en Ontario	3-57
3.2.3 TENDANCE DES ÉLÉMENTS ACIDES OBSERVÉS DANS L'EST DU CANADA		3-64
3.2.3.a	Variations temporelles du sulfate et du nitrate dans l'air et les précipitations de cinq stations d'observations fédérales, dans l'est du Canada	3-64
3.2.3.b	Variations temporelles des dépôts humides globaux de sulfate et de nitrate sur la partie est de l'Amérique du Nord	3-74

TABLE DES MATIÈRES (suite)

			PAGE
	3.2.3.c	Variations temporelles des concentrations de sulfate et de nitrate dans l'air et dans les précipitations à Dorset (Ontario)	3-81
	3.2.3.d	Relations source-récepteur établies par des études québécoises reliées à la distribution des émissions-dépôts	3-82
	3.2.3.e	Tendances dans les concentrations d'ozone de surface en Ontario	3-86
3.2.4	RAPPORTS SOURCE-RÉCEPTEUR ÉTABLIS PAR DES TRACEURS ATMOSPHÉRIQUES		3-92
	3.2.4.a	Introduction	3-92
	3.2.4.b	Stratification des données par secteur de vent aux stations de surveillance	3-93
	3.2.4.c	Analyse des trajectoires des masses d'air	3-94
	3.2.4.d	Modélisation des zones réceptrices	3-100
	3.2.4.e	Répercussions de la fermeture d'une source ponctuelle majeure	3-104
	3.2.4.f	Expérience CAPTEX (Utilisation de traceurs à travers la région des Appalaches)	3-105
	3.2.4.g	Expérience ANATEX (Utilisation de traceurs à travers l'Amérique du Nord)	3-106
	3.2.4.h	Bilan du soufre atmosphérique mis à jour pour l'est du Canada	3-106
	3.2.4.i	Brume arctique	3-109
3.2.5	RÉSUMÉ ET CONCLUSION		3-110
3.3	**RELATIONS ENTRE LA SOURCE ET LE RÉCEPTEUR ÉTABLIES À L'AIDE DES MODÈLES NUMÉRIQUES**		3-118
3.3.1	INTRODUCTION		3-118
3.3.2	PRINCIPAUX POINTS À CONSIDÉRER DANS LA MODÉLISATION DES RELATIONS SOURCE-RÉCEPTEUR		3-121

TABLE DES MATIÈRES (suite)

			PAGE
	3.3.2.a	Élaboration des modèles	3-122
	3.3.2.b	Données d'entrée	3-125
	3.3.2.c	Contraintes pratiques de calcul	3-127
3.3.3	QUESTIONS DE NON-LINÉARITÉ: CONSIDÉRATIONS LIÉES AUX PROCESSUS		3-127
3.3.4	MODÈLES LINÉAIRES		3-130
	3.3.4.a	Introduction	3-130
	3.3.4.b	Méthodes de modélisation	3-131
	3.3.4.c	Évaluation des modèles linéaires de transport à grande distance	3-132
	3.3.4.d	Projet international d'évaluation des modèles des dépôts de soufre (ISDME)	3-148
	3.3.4.e	Utilisation actuelle ou future des "modèles linéaires"	3-159
3.3.5	MODÈLES EULÉRIENS NON LINÉAIRES		3-159
	3.3.5.a	Brève description du modèle ADOM	3-160
	3.3.5.b	Utilisations du modèle OSCAR	3-163
	3.3.5.c	Utilisations du modèle ANATEX	3-171
	3.3.5.d	Épisode estival de teneurs élevées en ozone	3-175
	3.3.5.e	Étude hivernale	3-175
	3.3.5.f	Étude d'évaluation sur le terrain des modèles eulériens	3-181
	3.3.5.g	Comparaison préliminaire des modèles linéaires et des modèles exhaustifs	3-203
3.3.6	DISCUSSION ET CONCLUSION		3-210
ANNEXES			3-214
ANNEXE 3A	Meilleure estimation des dépôts secs par rapport aux dépôts totaux dans l'est du Canada		3-215

TABLE DES MATIÈRES (suite)

		PAGE
ANNEXE 3B	Répartitions des concentrations et des dépôts	3-222
ANNEXE 3C	Distributions spatiales et temporelles des concentrations atmosphériques de sulfates et de nitrates en Ontario	3-278
ANNEXE 3D	Variation en fonction du temps des concentrations de sulfates et de nitrates dans l'air et dans les précipitations à cinq sites de l'est du Canada	3-284
ANNEXE 3E	Tendances de la chimie des précipitations en Nouvelle-Écosse de 1978 à 1987	3-332
ANNEXE 3F	Variation en fonction du temps des concentrations de sulfates et de nitrates dans l'air et dans les précipitations à Dorset (Ontario)	3-338
ANNEXE 3G	Utilisations de scénarios prévus par les modèles de Lagrange	3-375
RÉFÉRENCES		3-383

LISTE DES TABLEAUX

TABLEAU n°		PAGE
	Section 3.2	
3.2.1	Émissions de SO_x au Canada de 1980 à 1985 (par région source - 1 000 tonnes/année).	3-20
3.2.2	Émissions de SO_x aux États-Unis de 1980 à 1985 (par région source - 1 000 tonnes/année).	3-21
3.2.3	Émissions de NO_x au Canada de 1980 à 1985 (par région source - 1 000 tonnes/année).	3-22
3.2.4	Émissions de NO_x aux États-Unis de 1980 à 1985 (par région source - 1 000 tonnes/année).	3-23
3.2.5	Émissions annuelles de SO_2 et de NO_x dans l'est de l'Amérique du Nord de 1980 à 1987.	3-24
3.2.6	Réseaux de surveillance des dépôts humides.	3-30
3.2.7	Résumé des résultats d'analyses des séries chronologiques des concentrations de $SO_4^=$ et de NO_3^- dans les précipitations à 5 endroits en milieu rural, dans l'est du Canada.	3-66
3.2.8	Résumé des résultats d'analyses des séries chronologiques des concentrations de $SO_4^=$, de SO_2 et de NO_3^- total dans l'air à 5 endroits en milieu rural, dans l'est du Canada.	3-67
3.2.9	Des dépôts annuels globaux, en MT/année, sur la partie est de l'Amérique du Nord pour la période 1980 à 1987 (région présentée à la figure 3.2.31).	3-80
3.2.10	Écart type d'estimation des dépôts humides globaux de $SO_4^=$ et de NO_3^- et valeurs des dépôts ± 3 écarts types de la moyenne (en début et fin de la période, 1980 à 1987).	3-80
3.2.11	Matrice sources-récepteur des dépôts humides de $SO_4^=$ et de NO_3^- dans deux stations d'observation du sud de l'Ontario, avec la contribution relative (%) des sources américaines et canadiennes.	3-96
3.2.12	Distribution du Pb atmosphérique (pondérée en fonction des concentrations) à l'aide du ratio Pb-206/Pb-207 observé sur des filtres d'échantillonneurs d'air à grand débit, à 3 endroits dans l'est du Canada, à l'automne 1984. On peut voir les incertitudes absolues associées à un écart type.	3-102

LISTE DES TABLEAUX (suite)

TABLEAU n°		PAGE
3.2.13	Estimations de la contribution des sources à la pollution atmosphérique par le Pb à Dorset, au cours de deux saisons. On peut voir les incertitudes absolues associées à un écart type.	3-103
3.2.14	Principaux termes liés au flux atmosphérique de l'est du Canada et des États-Unis de 1985 à 1987.	3-108
	Section 3.3	
3.3.1	Emplacements récepteurs vulnérables qui sont visés.	3-138
3.3.2	Résumé des coefficients de rang de Spearman attribués aux concentrations de $SO_4^=$ au niveau du sol à Muskoka (découlant du MDI; 1983b).	3-141
3.3.3	Résumé des coefficients de rang de Spearman attribués aux dépôts secs à Muskoka (découlant du MDI; 1982b).	3-141
3.3.4	Résumé des coefficients de rang de Spearman attribués aux dépôts humides à Muskoka (découlant du MDI; 1982).	3-142
3.3.5	Établissement des rangs par les modèles pour Muskoka (Ontario) - dépôts humides annuels (1978) de soufre.	3-145
3.3.6	Modèle annuel AES-LRT (1978) - matrice unité du $SO_4^=$ en microgrammes par mètre cube par Tg émis.	3-146
3.3.7	Modèle annuel AES-LRT (1978) - matrice unité des dépôts humides en kilogrammes de S par mètre cube par Tg émis.	3-147
3.3.8	Modèles étudiés et participants à l'évaluation ISDME.	3-149
3.3.9	Résumé des mesures de l'efficacité des modèles pour l'hiver 1980.	3-155
3.3.10	Résumé des mesures de l'efficacité des modèles pour l'automne 1980.	3-156
3.3.11	Résumé des mesures de l'efficacité des modèles pour le printemps 1980.	3-157
3.3.12	Résumé des mesures de l'efficacité des modèles pour l'été 1980.	3-158

LISTE DES TABLEAUX (suite)

TABLEAU n°		PAGE
3.3.13	Rapports $NO_3^-/SO_4^=$ observés dans les précipitations au cours des phases II et IV de l'utilisation d'OSCAR, au printemps, et dans une période hivernale.	3-180

LISTE DES FIGURES

FIGURE n°		PAGE
	Résumé	
3.S.1	Tendances des émissions de SO_2 et des concentrations de sulfates en excès dans les précipitations dans l'est de l'Amérique du Nord. Les différentes zones ombrées de la carte montrent les pourcentages de différence entre les champs des concentrations moyennes au cours de 1980 à 1982 et de 1985 à 1987. L'encadré situé immédiatement sous la carte montre les changements dans les émissions de SO_2 dans l'est de l'Amérique du Nord normalisées en fonction de 1980. Les encadrés extérieurs présentent les valeurs observées d'année en année, normalisées en fonction de 1980, à un certain nombre d'emplacements particuliers.	3-6
3.S.2	Tendances des émissions de NO_x et des concentrations de nitrates dans les précipitations de l'est de l'Amérique du Nord. Les différentes zones ombrées de la carte montrent les pourcentages de différence entre les champs des concentrations moyennes au cours de 1980 à 1982 et de 1985 à 1987. L'encadré situé immédiatement sous la carte montre les changements dans les émissions de NO_x dans l'est de l'Amérique du Nord normalisées en fonction de 1980. Les encadrés extérieurs présentent les valeurs observées d'année en année, normalisées en fonction de 1980, à un certain nombre d'emplacements particuliers.	3-7
	Section 3.2	
3.2.1	Carte schématique des régions qui connaissent actuellement des problèmes d'acidification ainsi que des régions où, d'après la vulnérabilité du sol, les émissions futures prévues et la densité de la population, l'acidification peut devenir grave dans l'avenir (tirée de Rhode et Herrera, 1988).	3-12
3.2.2	Configurations des concentrations moyennes pondérées de $SO_4^=$ dans les précipitations non marines pour l'est de l'Amérique du Nord (1982-1987).	3-13
3.2.3	Tableau de la nature des pluies acides à l'échelle du globe au début des années 1980.	3-14

LISTE DES FIGURES (suite)

FIGURE n°		PAGE
3.2.4	Stations d'étude de la chimie des précipitations utilisées dans la base de données NATCHEM (NATCHEM 1980-1987).	3-15
3.2.5	Émissions de SO_x en Amérique du Nord par région source : année 1980.	3-17
3.2.6	Émissions de SO_x en Amérique du Nord par région source : année 1985.	3-18
3.2.7	Différences entre 1985 et 1980 dans les émissions de SO_x en Amérique du Nord, présentées par région source.	3-19
3.2.8	Émissions de NO_x en Amérique du Nord par région source: année 1980	3-26
3.2.9	Émissions de NO_x en Amérique du Nord par région source : année 1985.	3-27
3.2.10	Différences entre 1985 et 1980 dans les émissions de SO_x en Amérique du Nord, présentées par région source.	3-28
3.2.11a	Emplacements de surveillance des dépôts humides au Canada et aux États-Unis utilisés pour produire les configurations spatiales des concentrations et des dépôts de 1980 à 1983.	3-31
3.2.11b	Emplacements de surveillance des dépôts humides au Canada et aux États-Unis utilisés pour produire les configurations spatiales des concentrations et des dépôts de 1984 à 1987.	3-32
3.2.12a	Configurations des concentrations moyennes annuelles pondérées du $SO_4^=$ en excès (mg/l) dans les précipitations : 1980 à 1983.	3-35
3.2.12b	Configurations des concentrations moyennes annuelles pondérées du $SO_4^=$ en excès (mg/l) dans les précipitations : 1984 à 1987.	3-36
3.2.13a	Configurations des dépôts humides annuels de $SO_4^=$ en excès (kg/ha/année) de 1980 à 1983.	3-37
3.2.13b	Configurations des dépôts humides annuels de $SO_4^=$ en excès (kg/ha/année) de 1984 à 1987.	3-38

LISTE DES FIGURES (suite)

FIGURE n°		PAGE
3.2.14a	Enveloppe des isoplèthes des dépôts annuels de sulfates dépassant 20 kg/ha/année pour les années 1980 à 1987.	3-41
3.2.14b	Superposition des isoplèthes des dépôts annuels de sulfates dépassant 20 kg/ha/année pour les années 1980 à 1982 et 1985 à 1987.	3-41
3.2.15a	Enveloppe des isoplèthes des dépôts annuels de nitrates dépassant 15 kg/ha/année pour les années 1980 à 1987.	3-42
3.2.15b	Superposition des isoplèthes des dépôts annuels de nitrates dépassant 15 kg/ha/année pour les années 1980 à 1982 et 1985 à 1987.	3-42
3.2.16	Configurations des concentrations et des dépôts moyens calculés sur six ans (1982 à 1987) des sulfates en excès.	3-46
3.2.17	Superposition des isoplèthes des concentrations moyennes calculées sur six ans (1982 à 1987) des sulfates en excès (2 et 3 mg/l) sur la configuration des émissions de SO_2 de 1985.	3-47
3.2.18	Configurations des concentrations et des dépôts moyens de nitrates calculés sur six ans (de 1982 à 1987).	3-51
3.2.19	Superposition des isoplèthes des concentrations moyennes calculées sur six ans (1982 à 1987) des nitrates (1,5 et 3 mg/l) sur la configuration des émissions de NO_x de 1985.	3-52
3.2.20	Roses des trajectoires (rétrotrajectoires de deux jours à 925 mb) des concentrations de sulfates (en haut) et de nitrates (en bas) dans les précipitations mesurées à plusieurs emplacements canadiens (MDI, 1982).	3-53
3.2.21	Configurations des concentrations et des dépôts moyens de H^+ calculés sur six ans (1982 à 1987).	3-54
3.2.22	Changements dans les concentrations moyennes pondérées de $SO_4^=$ dans les précipitations entre la période de 1980 à 1982 et celle de 1985 à 1987; ces changements sont exprimés par la configuration spatiale a) des variations absolues en mg/l et b) des pourcentages de variation par rapport à la première période.	3-55

LISTE DES FIGURES (suite)

FIGURE n°		PAGE
3.2.23	Changements dans les concentrations moyennes pondérées de NO_3^- dans les précipitations entre la période de 1980 à 1982 et celle de 1985 à 1987; ces changements sont exprimées par la configuration spatiale a) des variations absolues en mg/l et b) des pourcentages de variation par rapport à la première période.	3-56
3.2.24a	Moyenne annuelle calculée sur 28 jours des concentrations atmosphériques de SO_2 ($\mu g\ m^{-3}$) en Ontario: 1982 à 1986.	3-58
3.2.24b	Moyenne annuelle calculée sur 28 jours des concentrations atmosphériques de $SO_4^=$ ($\mu g\ m^{-3}$) en Ontario: 1982 à 1986.	3-59
3.2.24c	Moyenne calculée sur 28 jours des concentrations atmosphériques de tous les NO_3^- (μg d'azote m^{-3}) en Ontario: 1982 à 1986.	3-60
3.2.25	Variation des concentrations atmosphériques d'anhydride sulfureux ($\mu g\ m^{-3}$) en Ontario : comparaison entre 1982-1983 et 1985-1986.	3-61
3.2.26	Variation des concentrations atmosphériques des sulfates ($\mu g\ m^{-3}$) en Ontario : comparaison entre 1982-1983 et 1985-1986.	3-62
3.2.27	Variation de la concentration de tous les nitrates dans l'air ($\mu g\ N\ m^{-3}$) en Ontario : comparaison entre 1982-1983 et 1985-1986.	3-63
3.2.28	Carte montrant les emplacements de surveillance à long terme de l'atmosphère et des précipitations.	3-65
3.2.29a	Tendances normalisées des concentrations de $SO_4^=$ dans les précipitations (corrigées de l'influence de la hauteur des précipitations et excluant les cycles saisonniers).	3-68
3.2.29b	Tendances normalisées des concentrations de NO_3^- dans les précipitations (corrigées de l'influence de la hauteur des précipitations et excluant les cycles saisonniers).	3-69
3.2.30a	Variations normalisées des concentrations de SO_2 dans l'air (excluant les cycles saisonniers).	3-70
3.2.30b	Variations normalisées des concentrations de $SO_4^=$ dans l'air (excluant les cycles saisonniers).	3-71

LISTE DES FIGURES (suite)

FIGURE n°		PAGE
3.2.30c	Variations normalisées des concentrations de NO_3^- dans l'air (excluant les cycles saisonniers).	3-72
3.2.31	Superficie utilisée pour obtenir les dépôts humides intégrés de $SO_4^=$ et de NO_3^- dans l'est de l'Amérique du Nord.	3-75
3.2.32	Séries chronologiques montrant les émissions annuelles et les dépôts humides annuels intégrés pour l'est de l'Amérique du Nord de 1980 à 1987. a) SO_2 et $SO_4^=$ en excès et b) NO_x et NO_3^-. Toutes les valeurs ont été normalisées en prenant 1980 comme unité.	3-76
3.2.33	Corrélation entre les émissions annuelles et les dépôts humides annuels intégrés pour l'est de l'Amérique du Nord de 1980 à 1987. a) $SO_4^=$ en excès et b) NO_3^-. Toutes les valeurs ont été normalisées en prenant 1980 comme unité. Les droites de régression de meilleur ajustement et le coefficient de corrélation de Pearson (R) sont inclus.	3-77
3.2.34	Variation en fonction du temps des concentrations de sulfates et de nitrates dans l'air et dans les précipitations à Dorset (Ontario).	3-84
3.2.35	Concentrations saisonnières de sulfates et de nitrates pondérées en fonction de la quantité de précipitations à Dorset (Ontario).	3-85
3.2.36	Tendances échelonnées sur dix ans des concentrations d'O_3 et des cas de dépassement de 80 parties par milliard (80 ppb) dans tout l'Ontario.	3-87
3.2.37	"Jours épisodes" au cours desquels des teneurs élevées d'O_3 dépassant 80 parties par milliard (ppb) ont été enregistrées à plus de 8 emplacements de surveillance dans le sud de l'Ontario de 1979 à 1985.	3-89
3.2.38	Moyennes des concentrations horaires maximales d'ozone (O_3) calculées pour 144 jours épisodes dans le sud de l'Ontario.	3-90
3.2.39	Diagramme schématique illustrant les principales voies de déplacement des polluants et des traceurs réactifs et non réactifs dans l'atmosphère.	3-91

LISTE DES FIGURES (suite)

FIGURE n°		PAGE
3.2.40	Répartition entre les sources canadiennes et américaines des dépôts humides a) de sulfates et b) de nitrates enregistrés à Longwoods et à Railton (d'après des données de surveillance de 1981 à 1983 classées selon l'origine des trajectoires atmosphériques.	3-97
3.2.41	Pourcentages de contribution de chaque région aux épisodes d'émissions dans l'air ambiant a) de $SO_4^=$ et b) de NO_3^- enregistrées à Montmorency (Québec) au cours de la période de 1980 à 1984. Un épisode a été défini comme un jour où les concentrations observées atteignaient les premiers 5 % des concentrations maximales.	3-99
3.2.42	Tendances des émissions de SO_2 et des concentrations de sulfates en excès dans les précipitations dans l'est de l'Amérique du Nord. Les différentes zones ombrées de la carte montrent les pourcentages de différence entre les champs des concentrations moyennes au cours de 1980 à 1982 et de 1985 à 1987. L'encadré situé immédiatement sous la carte montre les changements dans les émissions de SO_2 dans l'est de l'Amérique du Nord normalisées en fonction de 1980. Les encadrés extérieurs présentent les valeurs observées d'année en année, normalisées en fonction de 1980, à un certain nombre d'emplacements particuliers.	3-116
3.2.43	Tendances des émissions de NO_x et des concentrations de nitrates dans les précipitations dans l'est de l'Amérique du Nord. Les différentes zones ombrées de la carte montrent les pourcentages de différence entre les champs des concentrations moyennes au cours de 1980 à 1982 et de 1985 à 1987. L'encadré situé immédiatement sous la carte montre les changements dans les émissions de SO_2 dans l'est de l'Amérique du Nord normalisées en fonction de 1980. Les encadrés extérieurs présentent les valeurs observées d'année en année, normalisées en fonction de 1980, à un certain nombre d'emplacements particuliers.	3-117
	Section 3.3	
3.3.1	Trajectoires utilisées par les modèles à partir de Sudbury (Ontario) en janvier 1978.	3-135

LISTE DES FIGURES (suite)

FIGURE n°		PAGE
3.3.2	Trajectoires utilisées par les modèles à partir de Sudbury (Ontario) en juillet 1978.	3-136
3.3.3	Régions sources des émissions en Amérique du Nord.	3-139
3.3.4	Régions de l'Amérique du Nord pour lesquelles les émissions ont été rassemblées.	3-140
3.3.5	Pourcentage moyen des dépôts humides annuels observés et prévus par rapport à 1980 pour chaque saison à 30 emplacements utilisés dans le cadre de l'évaluation ISDME.	3-154
3.3.6	Taux de toutes les émissions de SO_2 (en tonnes métriques par jour) au cours du printemps dans chaque grille du modèle ADOM (127 km sur 127 km).	3-162
3.3.7	Quantité totale de précipitations (mm) au cours d'OSCAR II, III ET IV (du 10 au 29 avril 1981) représentée à l'intérieur du domaine utilisé pour ADOM.	3-165
3.3.8	a) Concentrations des $SO_4^=$ dans les précipitations selon OSCAR II (nouveau module de lessivage). b) Concentrations des $SO_4^=$ dans les précipitations selon OSCAR IV (nouveau module de lessivage).	3-166
3.3.9	a) Concentrations des nitrates dans les précipitations selon OSCAR II (nouveau module de lessivage). b) Concentrations des nitrates dans les précipitations selon OSCAR IV (nouveau module de lessivage).	3-167
3.3.10	Moyenne calculée sur 16 jours (du 10 au 25 avril 1981) du flux des dépôts humides ($\mu g\ m^{-2}\ h^{-1}$) de $SO_4^=$ prévu par le modèle de Lagrange. Cette moyenne est donnée pour le domaine des grilles de l'ADOM. Un dépôt de fond de 67 $\mu g\ m^{-2}\ h^{-1}$ est ajouté au résultat du modèle pour tenir compte des contributions non anthropiques et de celles qui proviennent de l'extérieur du domaine.	3-168
3.3.11	Moyenne calculée sur 16 jours (du 10 au 25 avril 1981) du flux des dépôts humides ($\mu g\ m^{-2}\ h^{-1}$) de $SO_4^=$ prévu par le modèle ADOM.	3-169

LISTE DES FIGURES (suite)

FIGURE n°		PAGE
3.3.12	Moyenne calculée sur 20 jours (du 10 au 29 avril 1981) du pourcentage de réduction prévu par ADOM des concentrations de $SO_4^=$ dans les précipitations par suite d'une réduction de 50 % des émissions de SO_2 et de $SO_4^=$ dans tout le domaine.	3-170
3.3.13	Réseau d'échantillonnage primaire au niveau du sol pour ANATEX. L'endroit exact des stations se trouve au centre de chaque numéro d'emplacement.	3-172
3.3.14	Configurations observées et prévues des PDCH pour les 44 premiers jours de l'utilisation d'ANATEX. Les courbes de niveau se situent à 0,5, 1, 2, 5, 10, 20, 50, 100 fl/l, et la courbe située le plus à l'extérieur est à 0,5.	3-173
3.3.15	Configurations observées et prévues des PDCH pour les trois premiers jours suivant la première émission effectuée au cours de l'utilisation d'ANATEX. Les courbes de niveau observées débutent à 1 fl/l à partir de l'extérieur et augmentent par étape de 4 fl/l. Les courbes de niveau prévues débutent à 1 fl/l à partir de l'extérieur et augmentent par étape de 10 fl/l.	3-174
3.3.16	Concentrations d'ozone observées du 9 au 17 juin 1983, dans le sud de l'Ontario et le nord de l'Ohio.	3-177
3.3.17	Moyenne calculée par épisode des concentrations de $SO_4^=$ dans les précipitations.	3-178
3.3.18	Réduction (%) des dépôts humides de soufre découlant d'une réduction de 50 % des émissions de SO_x dans la grille.	3-179
3.3.19	Emplacements et régions de surveillance utilisés pour l'étude d'évaluation sur le terrain des modèles d'Euler (EMEFS).	3-182
3.3.20	Prévisions des modèles et concentrations de SO_2 ($\mu g/m^3$) observées au niveau du sol du 28 juillet au 8 août et du 25 août au 5 septembre 1988.	3-185

LISTE DES FIGURES (suite)

FIGURE n°		PAGE
3.3.21	Graphique des séries chronologiques des concentrations moyennes observées et prévues de SO_2 ($\mu g/m^3$) dans les régions 3 et 5 au cours des périodes 1 et 2.	3-186
3.3.22	Prévisions des modèles et concentrations de $SO_4^=$ ($\mu g/m^3$) observées au niveau du sol du 28 juillet au 8 août et du 25 août au 5 septembre 1988.	3-187
3.3.23	Graphique des séries chronologiques des concentrations moyennes observées et prévues de $SO_4^=$ ($\mu g/m^3$) dans les régions 3 et 6 au cours des périodes 1 et 2.	3-188
3.3.24	Prévisions des modèles et concentrations du soufre total ($\mu g/m^3$) observées au niveau du sol du 28 juillet au 8 août et du 25 août au 5 septembre 1988.	3-191
3.3.25	Prévisions des modèles et concentrations de $SO_{4=}$ (mg/l) observées dans les précipitations du 28 juillet au 8 août et du 25 août au 5 septembre 1988.	3-192
3.3.26	Prévisions des modèles et concentrations de NO_2 ($\mu g/m^3$) observées au niveau du sol du 28 juillet au 8 août et du 25 août au 5 septembre 1988.	3-193
3.3.27	Graphique des séries chronologiques des concentrations moyennes observées et prévues de NO_2 ($\mu g/m^3$) dans les régions 3 et 6 au cours des périodes 1 et 2.	3-194
3.3.28	Prévisions des modèles et concentrations de tous les nitrates ($\mu g/m^3$) observées au niveau du sol du 28 juillet au 8 août et du 25 août au 5 septembre 1988.	3-197
3.3.29	Graphique des séries chronologiques des concentrations moyennes observées et prévues de nitrates ($\mu g/m^3$) dans les régions 3 et 5 au cours des périodes 1 et 2.	3-198
3.3.30	Prévisions des modèles et concentrations de tous les nitrates (mg/l) observées dans les précipitations du 28 juillet au 8 août et du 25 août au 5 septembre 1988.	3-199

LISTE DES FIGURES (suite)

FIGURE n°		PAGE
3.3.31	Prévisions des modèles (tiret) et concentrations d'ozone (x) observées à des emplacements choisis de l'Ontario (16,18), du Michigan (13,13) et du Maine (23,19) pendant la Période 1 (de 28 Juillet à 8 Août) et la Période 2 (de 25 Août à 6 Septembre).	3-200
3.3.32	Prévisions du modèle lagrangien du ministère ontarien de l'Environnement pour la période d'évaluation EMEFS - SO_2 ($\mu g/m^3$).	3-204
3.3.33	Prévisions du modèle lagrangien du ministère ontarien de l'Environnement pour la période d'évaluation EMEFS - $SO_4^=$ ($\mu g/m^3$).	3-205
3.3.34	Prévisions du modèle lagranagien du ministère ontarien de l'Environnement pour la période d'évaluation EMEFS - $SO_4^=$ (mg/l).	3-206

RÉSUMÉ

Diverses approches à l'évaluation des rapports source-récepteur (c.-à-d. des rapports quantitatifs entre les émissions actuelles et futures d'une part, et l'exposition des récepteurs ou zones réceptrices d'autre part) sont examinées ici, dans le contexte du problème nord-américain des précipitations acides. Nous avons mis l'accent particulièrement sur les études canadiennes. Il existe au Canada des programmes de surveillance de l'air et des précipitations depuis le début des années 1980, qui ont à ce jour fourni un ensemble considérable de données de haute qualité. L'élaboration et l'évaluation de divers modèles mathématiques sur les pluies acides, y compris du modèle lagrangien et du modèle eulérien plus perfectionné sur les oxydants et les dépôts acides (ADOM), ont également marqué la décennie 1980.

La variation observée dans les émissions de gaz acides de l'est de l'Amérique du Nord a été examinée et des changements importants survenus depuis 1980 au Canada et dans les États américains adjacents ont été déterminés. La réaction des dépôts spatiaux ainsi que des concentrations dans l'air et les précipitations de l'est du Canada ont été étudiées.

En dépit de l'interférence créée par la variabilité météorologique, l'analyse des données montre que les variations spatiales et temporelles des concentrations de sulfate de l'air et des précipitations s'accordent avec les changements survenus dans les émissions de l'est de l'Amérique du Nord. D'autres genres d'analyses des données par traceurs et analyses de trajectoire de types variés montrent clairement l'impact des régions émettrices de gaz acides sur les régions réceptrices en aval. Cependant, ces analyses ne permettent généralement pas de quantifier la contribution d'une région émettrice en particulier aux dépôts acides d'une région réceptrice donnée.

Dans ce rapport, nous examinons l'état actuel de nos connaissances sur la capacité des modèles disponibles à prévoir les rapports source-récepteur. Malheureusement, tous les résultats d'une étude de premier plan sur le terrain pour évaluer un certain nombre de modèles eulériens sur le transport, la transformation et le dépôt de gaz acides - Étude d'évaluation sur le terrain de modèles eulériens - ne sont pas encore disponibles, bien que les résultats d'une évaluation préliminaire des modèles eulériens aient été conclus. Cependant, il est possible d'arriver à certaines conclusions sur la gravité du problème de non-linéarité très controversé lorsque nous évaluons divers scénarios d'émissions et sur l'applicabilité de modèles linéaires relativement simples utilisés au milieu des années 1980 dans l'élaboration de la politique canadienne de lutte contre les émissions de gaz acides.

Nous aborderons ci-dessous deux questions qui concernent les rapports source-récepteur.

1. Dans quelle mesure l'état actuel de nos connaissances nous permet-il d'établir les rapports source-récepteur actuels et futurs?

Il existe actuellement diverses approches pour évaluer les rapports source-récepteur. Ces approches reposent à la fois sur l'analyse des mesures des concentrations atmosphériques et sur les prévisions établies grâce à des modèles mathématiques du transport sur de grandes distances.

Il est clair que, à l'échelle du continent, la distribution spatiale des émissions de gaz acides est qualitativement reliée à la distribution spatiale des concentrations atmosphériques et des dépôts humides. Bien que nous ne puissions pas déterminer de rapports source-récepteur précis à partir de cette combinaison de distributions, nous pouvons au moins raisonnablement conclure que, à l'échelle spatiale globale, les changements survenus dans les émissions de soufre de la partie est de l'Amérique du Nord ont occasionné des modifications dans la chimie de l'air et des précipitations ainsi que dans les dépôts de la région. La diminution observée dans l'ensemble de la région de l'Est canadien ayant reçu des dépôts humides de sulfate supérieurs à 20 kg par hectare par année, entre 1980 et 1987, et la baisse simultanée d'anhydride sulfureux atmosphérique sont sans aucun doute partiellement imputables à la diminution générale des émissions de SO_2 au Canada et dans les États américains adjacents aux provinces canadiennes. On compte également un certain nombre d'autres facteurs responsables dont le principal est l'influence des conditions météorologiques. Dans la même région, nous ne notons aucune tendance nette dans les émissions de NO_x, au cours de la même période, et aucun changement de grande envergure dans le patron des dépôts humides de nitrate ne ressort des données.

Les analyses des tendances temporelles à partir de données sur la chimie de l'air et des précipitations d'endroits donnés fournissent également une information intéressante, interprétée à la lumière des changements observés dans les émissions régionales. L'interprétation est rendue plus ardue du fait de l'interférence introduite par la variabilité des conditions météorologiques, bien que nous puissions y remédier partiellement par l'application de diverses méthodes statistiques. Les variations temporelles dans les observations s'accordent avec les modifications à grande échelle dans les émissions. Ainsi, à un certain nombre d'endroits de l'est du Canada, là où nous procédons à des évaluations aérométriques depuis la fin des années 1970 ou le début des années 1980, nous avons observé des diminutions statistiquement significatives de SO_2 atmosphérique, le principal composé de soufre atmosphérique présent dans l'air. Ces endroits se trouvent dans les régions où les émissions de SO_2 ont baissé de plus de 10 pour cent ou en aval de ces régions. L'interprétation statistique des changements survenus dans le sulfate et le nitrate contenus dans les précipitations est plus difficile étant donné l'imprécision additionnelle attribuable aux processus de lessivage des polluants.

Toutefois, les résultats demeurent conformes aux variations des émissions de NO_x et de SO_2 en amont (voir les exemples aux figures 3.S.1 et 3.S.2).

Divers types d'analyses des trajectoires des masses d'air ont été appliqués avec succès dans un certain nombre de cas étudiés, y compris l'analyse des épisodes de dépôt humide de sulfate et de nitrate ainsi que d'ozone au Canada. Ils indiquent clairement que l'origine des concentrations épisodiques d'ozone ou d'acide sont les régions émettrices du sud. Cependant, la stratification des concentrations mesurées par trajectoire peut seulement indiquer toutes les sources d'un secteur donné et ne permet pas de faire la distinction entre les sources locales et les sources éloignées à l'intérieur d'un secteur. Lorsque les processus physico-chimiques influençant les concentrations de polluants le long de la trajectoire sont pris en compte de façon empirique, nous pouvons alors isoler l'impact de chacune des diverses régions émettrices. C'est de cette façon que nous avons évalué les rapports source-récepteur quantitatifs semi-empiriques, ce qui a permis de faire apparaître la contribution de différentes régions émettrices aux dépôts acides du parc Montmorency situé au Québec, par exemple. Les résultats s'accordent raisonnablement bien avec les prévisions établies à l'aide d'un certain nombre de modèles linéaires de transport sur de grandes distances.

La modélisation des données reliées à la zone réceptrice, à partir du fait que les aérosols atmosphériques renferment de nombreux éléments traces dont nous connaissons les sources (processus de combustion, de fusion ou processus naturels), a été employée pour démarquer les unes des autres les régions émettrices étendues qui contribuent à l'acidification atmosphérique observée dans une station de surveillance. À l'aide de cette approche, nous avons montré que l'impact des sources du centre-ouest ("midwest") sur les zones réceptrices du Rhode Island et du Vermont concordait raisonnablement bien avec les prévisions établies au moyen de modèles simples de transport sur de grandes distances. En outre, des études sur la chimie des aérosols ont montré que l'indium, l'arsenic et la composition isotopique du plomb étaient des traceurs utiles de la pollution associée aux émissions de gaz acides (fonderies du nord, produits de la combustion du charbon et monoxyde de carbone rejeté par les automobiles au Canada et aux États-Unis, surtout).

Les modèles mathématiques de transport sur de grandes distances constituent actuellement le moyen le plus efficace à notre disposition pour établir quantitativement les rapports source-récepteur. Bien qu'il n'existe pas de méthode pratique directe pour déterminer le degré d'incertitude des rapports source-récepteur prévus à l'aide de ces modèles, nous pouvons leur faire confiance à cause de leur aptitude à prévoir les distributions temporelles et spatiales observées pour les dépôts et les concentrations atmosphériques. À cet égard, les modèles linéaires simples utilisés dans l'évaluation des rapports source-récepteur aux fins du programme canadien de lutte contre les émissions ont un rendement raisonnablement bon. Nous devons souligner le fait que,lorsque les émissions sont réduites comme ce sera vraisemblablement le cas dans l'avenir grâce aux programmes actuels de lutte contre les émissions, il n'existe pas de données auxquelles

nous puissions comparer les modèles. Ainsi, la meilleure chose que nous puissions faire dans l'avenir est de nous en remettre aux prévisions établies à l'aide des modèles de transport des éléments chimiques, qui regroupent les simulations les plus réalistes des processus influant sur les polluants qui se déplacent de la zone émettrice à la zone réceptrice.

2. Du point de vue des sciences de l'atmosphère, quels sont les rajustements qui s'imposent, s'il en est, aux fins du programme canadien de lutte contre les émissions de gaz acides pour 1994?

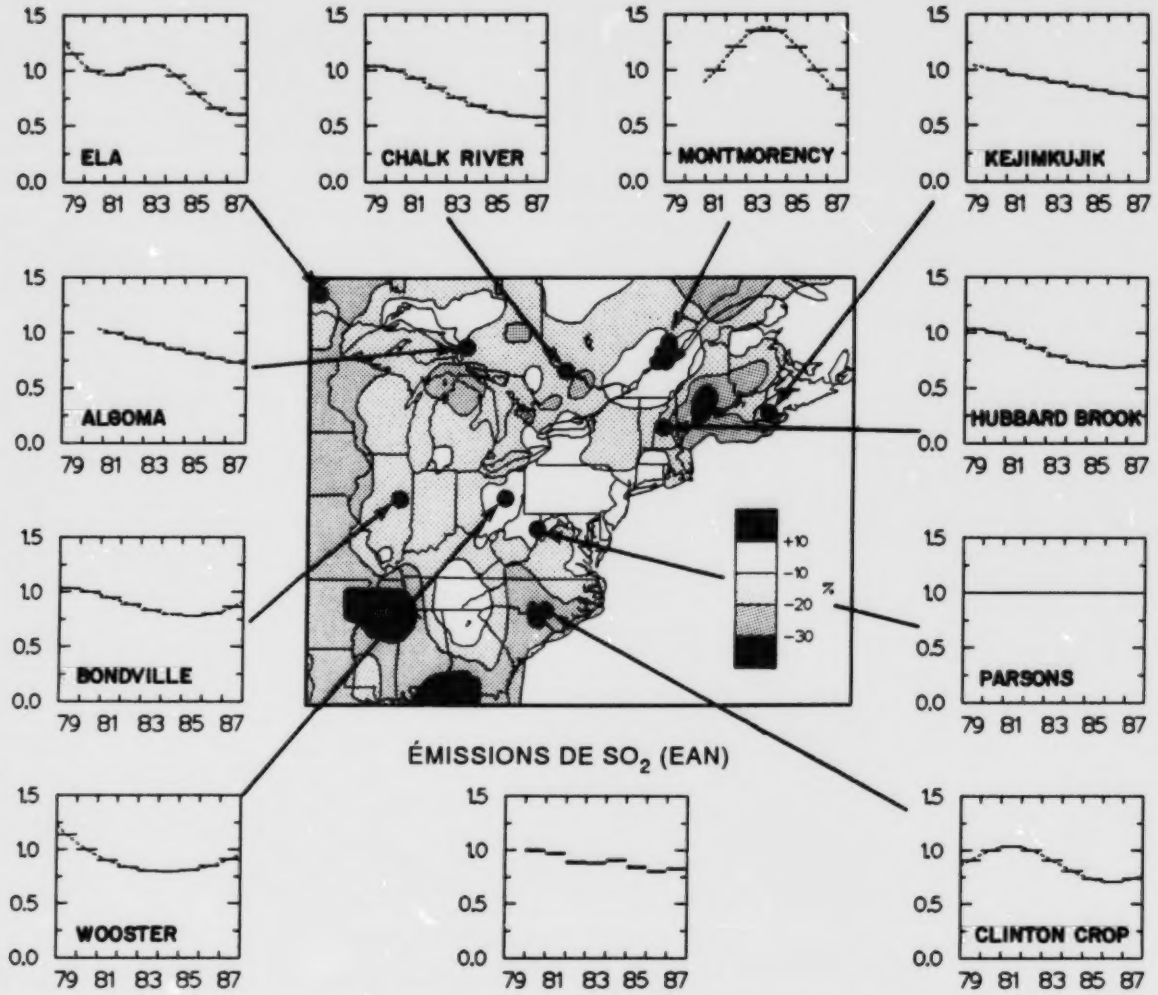
Reconnaissant que le programme canadien de lutte contre les émissions se fonde sur l'hypothèse d'un rapport linéaire entre les émissions de la zone émettrice et les dépôts sous le vent (tel que simulé par les modèles simples de transport sur de grandes distances) et sur l'hypothèse qu'une réduction de 50 pour cent dans les émissions au Canada et aux É.-U. aura pour effet d'abaisser les dépôts humides de soufre de façon que ceux-ci représenteront une charge inférieure à la charge annuelle cible de 20 kg/ha, nous avançons les conclusions suivantes.

Les modèles linéaires simples de transport sur de grandes distances comme ceux employés au milieu de la décennie 1980 pour élaborer la politique canadienne de lutte contre les émissions de gaz acides exagèrent probablement l'importance prévue des réductions dans les dépôts après imposition des mesures de contrôle. Cependant, les résultats obtenus à ce jour avec les modèles eulériens indiquent que, au printemps, une réduction de 50 pour cent des émissions d'anhydride sulfureux, par rapport aux niveaux de 1980, aura pour effet d'abaisser les dépôts humides de soufre de 30 à 40 pour cent dans l'est de l'Amérique du Nord. Il s'agit là de non-linéarité qui, à l'heure actuelle, ne peut être considérée comme significative, compte tenu de l'incertitude du modèle et des observations faites. Pendant l'hiver, les quelques simulations de modélisation disponibles font croire à des effets non linéaires plus prononcés. D'autre part, les simulations pour l'été, période pour laquelle aucune évaluation de modélisation n'a été effectuée à ce jour,devraient donner des résultats plus linéaires, car c'est pendant cette saison que le niveau des oxydants, qui entraîne l'oxydation du SO_2, est le plus élevé. En outre, il faut souligner que les observations ci-dessus s'appliquent uniquement aux dépôts humides. Les dépôts totaux de soufre (humides et secs) répondent aux changements dans les émissions d'une façon encore plus linéaire que les dépôts humides seuls.

Nous n'avons pas encore tous les résultats d'une étude importante actuellement en cours pour évaluer un certain nombre de modèles eulériens plus complexes s'efforçant d'intégrer nos connaissances les plus à jour des processus atmosphériques conduisant aux dépôts acides. Nous avons procédé jusqu'à présent à une évaluation préliminaire et partielle des modèles eulériens ADOM (Modèle relatif aux oxydants et aux dépôts acides) et RADM (Modèle relatif aux dépôts acides régionaux) seulement, c'est pourquoi nous ne pouvons pas encore tirer de conclusions pour déterminer lesquels des modèles

(simples ou complexes) permettent de reproduire le mieux les observations (voir la figure 3.S.3).

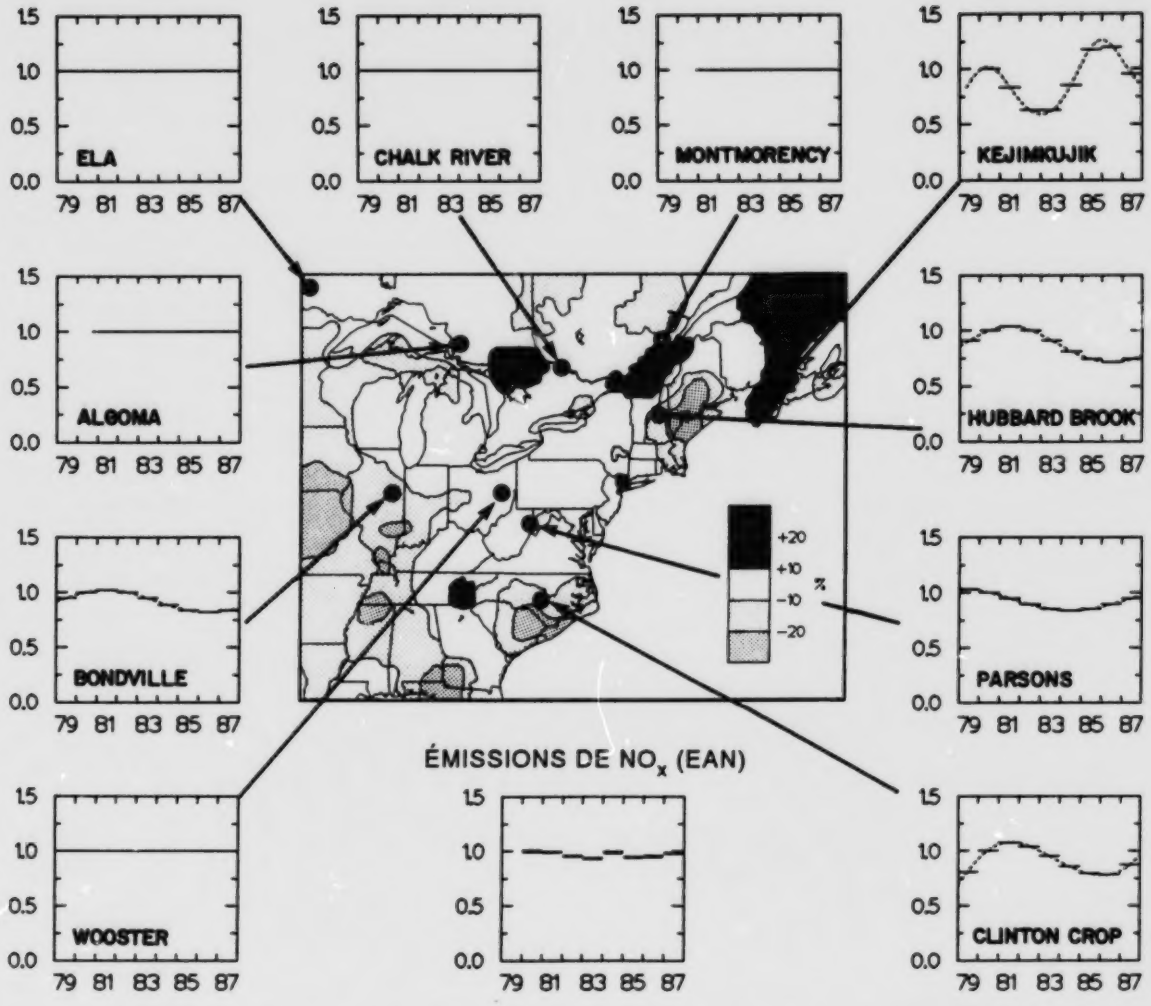
Compte tenu de ce qui précède, nous concluons que les modèles linéaires moins perfectionnés scientifiquement peuvent servir à des fins de réglementation pour fournir des rapports source-récepteur reliés au dépôt total de soufre, spécialement sur une base annuelle ou saisonnière. À cet égard, les résultats de la modélisation atmosphérique, mis à contribution dans la planification du programme canadien de lutte contre les émissions de gaz acides, peuvent être considérés comme toujours valables.



DIFFÉRENCE EN POUR CENT DE LA MOYENNE DE 3 ANS (1980-82, 1985-87)
DES CONCENTRATIONS DE $SO_4^=$ EN EXCÉS

EAN: L'Est de l'Amérique du Nord

Figure 3.S.1 Tendances des émissions de SO_2 et des concentrations de sulfates en excès dans les précipitations dans l'est de l'Amérique du Nord. Les différentes zones ombrées de la carte montrent les pourcentages de différence entre les champs des concentrations moyennes au cours de 1980 à 1982 et de 1985 à 1987. L'encadré situé immédiatement sous la carte montre les changements dans les émissions de SO_2 dans l'est de l'Amérique du Nord normalisées en fonction de 1980. Les encadrés extérieurs présentent les valeurs observées d'année en année, normalisées en fonction de 1980, à un certain nombre d'emplacements particuliers.



DIFFÉRENCE EN POUR CENT DE LA MOYENNE DE 3 ANS (1980-82, 1985-87)
DES CONCENTRATIONS DE NO_3^-

EAN: L'Est de l'Amérique du Nord

Figure 3.S.2 Tendances des émissions de NO_x et des concentrations de nitrates dans les précipitations de l'est de l'Amérique du Nord. Les différentes zones ombrées de la carte montrent les pourcentages de différence entre les champs des concentrations moyennes au cours de 1980 à 1982 et de 1985 à 1987. L'encadré situé immédiatement sous la carte montre les changements dans les émissions de NO_x dans l'est de l'Amérique du Nord normalisées en fonction de 1980. Les encadrés extérieurs présentent les valeurs observées d'année en année, normalisées en fonction de 1980, à un certain nombre d'emplacements particuliers.

3.1 INTRODUCTION

La question du rapport source-récepteur, c.-à-d., du rapport quantitatif entre les émissions (actuelles et futures) et l'exposition de la zone réceptrice aux dépôts acides, a été au coeur du débat sur la lutte contre les pluies acides. Que nous examinions une stratégie de lutte contre les émissions qui soit globale ou par objectifs importe peu, car, même si nous adoptions une politique globale, le fait de connaître le rapport source-récepteur nous permettrait de prévoir dans quelle mesure nous pourrions réduire l'exposition d'une zone réceptrice aux dépôts acides (pour exemple, voir Summers, 1984).

La complexité du problème place dans un dilemne les décisionnaires en matière de politique. Les arguments invoqués en faveur de l'adoption de mesures d'atténuation sont puissants. Les dommages imputables aux pluies acides sont maintenant bien documentés et généralement reconnus. L'impact des sources anthropiques a été clairement démontré. Il existe des techniques de lutte contre les émissions qui permettent de réduire considérablement les émissions de gaz acides des sources en cause. D'autre part, d'après bien des chercheurs, nos connaissances scientifiques actuelles sur le phénomène sont incomplètes et nous nous attendons à ce que les coûts de lutte contre les émissions atteignent des milliards de dollars (voir Hidy, 1984; Crocker et Regens, 1985). Nous voulons par ailleurs nous assurer que les mesures de lutte adoptées profiteront réellement à l'environnement. Nos connaissances des rapports source-récepteur sont l'un des facteurs déterminants du processus de prise de décisions.

Au Canada, les provinces de l'Est et le gouvernement fédéral ont décidé, en 1984, qu'on en savait assez pour adopter des mesures unilatérales visant à ramener les émissions canadiennes d'anhydride sulfureux à un maximum de 2,3 millions de tonnes pour 1994 (ce qui représentait une réduction de 50 pour cent par rapport à l'année de base 1980), même en l'absence de tout contrôle imposé aux principales régions émettrices situées au sud de la frontière canado-américaine. Le 5 février 1985, les gouvernements fédéral et provinciaux se sont mis d'accord sur une série de mesures menant à une première réduction de 1,9 million de tonnes et se sont engagés à planifier des réductions additionnelles applicables à chaque province sur une période suffisante pour permettre l'atteinte de l'objectif en 1994.

Des modèles de transport sur de grandes distances actuellement disponibles (Young, 1988; Young et Shaw, 1986) ont été utilisés pour déterminer la réduction des émissions s'appliquant à chaque province. On estimait que les connaissances scientifiques des rapports source-récepteur étaient suffisamment solides pour former la base de mesures visant à contrôler les émissions. Par la suite, l'Ontario et le Québec ont même dépassé les engagements pris aux réunions fédérales-provinciales, annonçant leurs propres programmes de réduction des pluies acides en 1985. Conformément au document intitulé "Les pluies acides : un compte à rebours", les émissions ontariennes d'anhydride sulfureux sont censées baisser pour passer du niveau de 2,19 millions de tonnes (année

de base 1980) à 0,885 million de tonnes en 1994. Le Québec s'est engagé à réduire encore ses émissions d'anhydride sulfureux : on s'attend à des diminutions supplémentaires de la fonderie de Noranda pour 1995, ce qui fera passer les émissions du Québec de 1,09 million de tonnes en 1980 à moins de 0,550 million en 1995. Les émissions d'oxydes d'azote seront elles aussi assujetties à des mesures de lutte considérables.

Pour sa part, l'administration américaine s'est jusqu'à récemment montrée réticente à l'adoption de mesures de lutte contre les émissions jusqu'à ce qu'un certain nombre de questions scientifiques clés soient résolues, ce qui se produirait, espérait-on, d'ici la fin du programme national d'évaluation des précipitations acides des États-Unis (National Acid Precipitation Assessment Program - NAPAP), en 1990. En ce qui concerne les rapports source-récepteur, la question clé est celle de la linéarité : y aura-t-il rapport proportionnel entre les changements dans les émissions d'une zone émettrice assujettie à des mesures de lutte et les changements qui se produiront dans les dépôts émanant de cette région émettrice, reçus par une région réceptrice sensible?

L'un des principaux faits nouveaux, dans l'étude des pluies acides des dernières années, a donc été l'investissement de millions de dollars par le Canada et les États-Unis dans la mise au point de modèles eulériens perfectionnés (par exemple le modèle canadien relatif aux oxydants et aux dépôts acides - ADOM - et le modèle relatif aux dépôts acides régionaux du NAPAP - RADM - voir Venkatram et collaborateurs, 1988; Chang et collaborateurs, 1987). Ces efforts pour regrouper (dans les limites des possibilités actuelles de nos ordinateurs) nos connaissances les plus à jour des processus atmosphériques responsables des dépôts acides mèneront peut-être, après validation avec les données recueillies sur le terrain, à l'obtention d'instruments de choix pour déterminer les rapports source-récepteur dans le cadre de divers scénarios d'émissions pour les deux types d'acide comme pour d'autres polluants transportés sur de grandes distances, par exemple les oxydants. Outre la modélisation mathématique, il existe un certain nombre d'autres approches scientifiques disponibles pour évaluer (d'après des échelles d'évaluation spatiales et temporelles variées) les rapports source-récepteur. Les conférences et les publications scientifiques des dernières années regorgent de comptes rendus sur ce sujet.

Le présent document a pour but de dresser le bilan de nos connaissances sur les rapports source-récepteur et de passer en revue les répercussions de ces connaissances sur les mesures de lutte contre les émissions. On met l'accent sur les oxydes d'azote et de soufre.

Ce document

1. donne un aperçu des rapports source-récepteur tirés des mesures des concentrations atmosphériques et des dépôts acides;
2. traite des rapports source-récepteur à partir des modèles mathématiques de transport sur de grandes distances (modèles simples et complexes).

On inclut également sept annexes qui renferment des cartes sur la chimie des précipitations et sur les dépôts humides dont il est question dans ce document, les comptes rendus sur les effets terrestres et aquatiques associés aux concentrations dans les précipitations et aux dépôts acides, des analyses des tendances reliées aux données provenant de divers réseaux canadiens et des projections sur les dépôts futurs fondées sur la modélisation mathématique.

En rédigeant ce document, les auteurs devaient garder à l'esprit les deux questions importantes suivantes.

1. Jusqu'à quel point les connaissances actuelles nous permettent-elles d'établir des rapports source-récepteur actuels et futurs?

2. Du point de vue des sciences de l'atmosphère, quels sont les rajustements qui s'imposent, s'il en est, dans le programme canadien de lutte contre les émissions de gaz acides pour 1994 et au delà?

3.2 APERÇU DES RAPPORTS SOURCE-RÉCEPTEUR DES ACIDES ET DE L'OZONE PAR L'EXAMEN DES COMBINAISONS DE PROFILS, DES TENDANCES ET DES DONNÉES

3.2.1 INTRODUCTION

Il est admis que, les acides issus des émissions atmosphériques d'oxydes d'azote et de soufre, se produisant sur des sols sensibles à l'acidification, sont une source de problèmes dans certaines régions du globe (figure 3.2.1). Comme la durée de vie moyenne de ces acides dans l'atmosphère est de l'ordre de quelques jours à un maximum d'une semaine (Summers et Fricke, 1989), les pluies acides sont par nature un problème régional. Ceci est par ailleurs très bien illustré par la distribution spatiale des teneurs en sulfates dans les eaux de précipitations sur le nord-est de l'Amérique du Nord (figure 3.2.2) et par la distribution spatiale de l'acidité des précipitations sur l'ensemble (figure 3.2.3).

Dans ce chapitre, nous nous concentrerons sur les mesures des répartitions spatiales régionales, sur les tendances temporelles des composés acides dans l'atmosphère et dans les précipitations d'Amérique du Nord ainsi que sur les traceurs atmosphériques. On s'intéressera particulièrement à l'information que l'on peut obtenir pour la décennie 1980 sur les rapports entre les sources de pollution et les zones réceptrices. Nous disposons d'un très grand nombre de mesures provenant de plus de 100 stations régionales au Canada, entre 1980 et 1986, pour les précipitations et l'air (un plus grand nombre de mesures sont disposables pour les précipitations que pour l'air). La figure 3.2.4 montre où sont situées les stations de surveillance au Canada. La série des données combinées fédérales/provinciales est conservée par Environnement Canada dans la base nationale de données sur la chimie de l'atmosphère (NATChem).

Le programme d'évaluation canadien est unique en Amérique du Nord : il a permis de surveiller les concentrations d'acides dans l'air et dans les précipitations de 1980 à 1986. On peut donc examiner les tendances dans la qualité de l'air régional. Ce n'est que récemment que les États-Unis ont créé un réseau régional de surveillance de l'air. Aucune donnée sur les tendances n'est disponible.

3.2.2 ÉMISSIONS ET OBSERVATIONS ATMOSPHÉRIQUES

Pour l'évaluation qualitative du rapport source-récepteur, il est utile de comparer la répartition spatiale des émissions acides avec la distribution des dépôts ou de la composition chimique des précipitations. Cette comparaison repose sur les valeurs cumulées sur une période minimal d'une année.

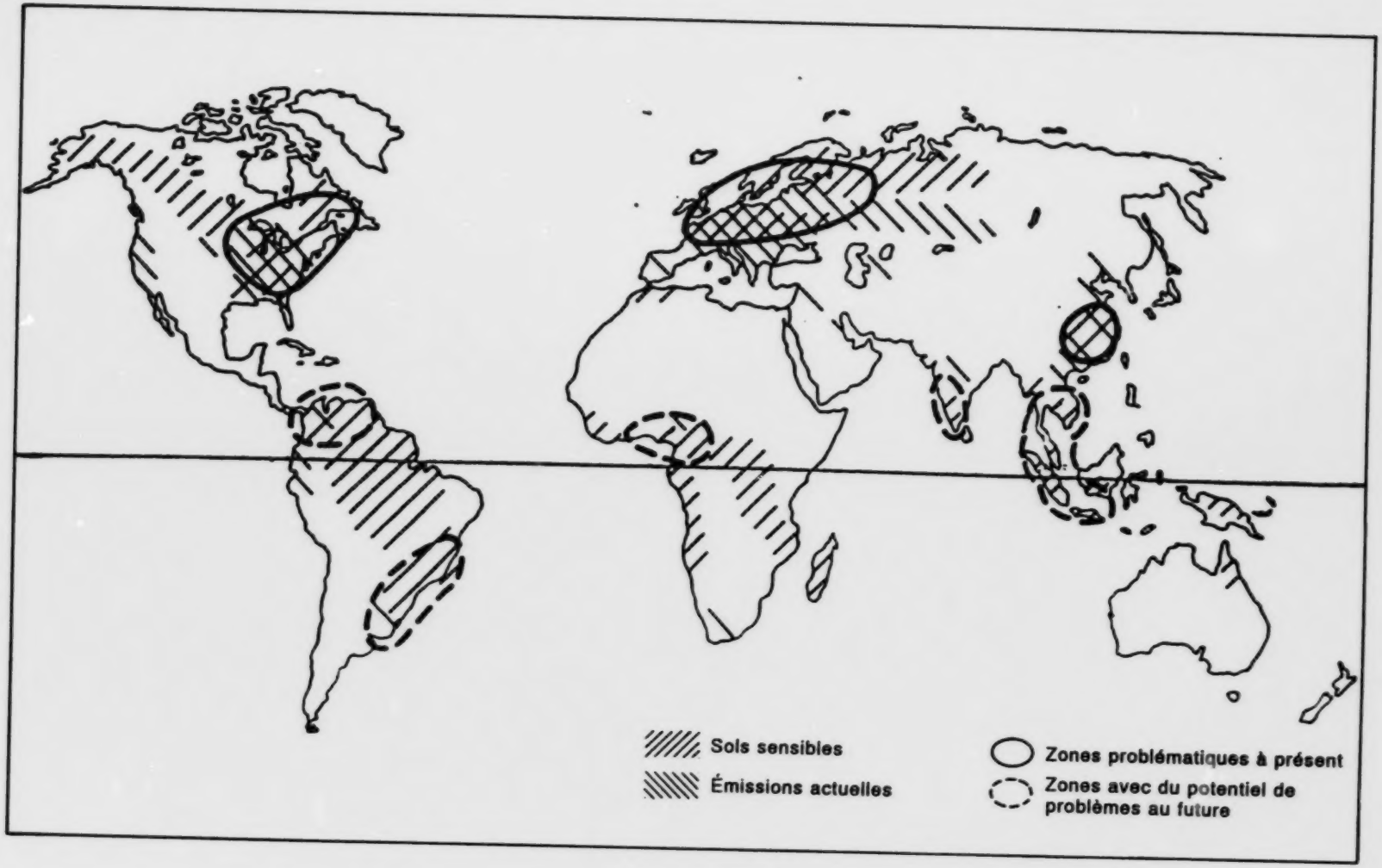


Figure 3.2.1 Carte schématique des régions qui connaissent actuellement des problèmes d'acidification ainsi que des régions où, d'après la vulnérabilité du sol, les émissions futures prévues et la densité de la population, l'acidification peut devenir grave dans l'avenir (tirée de Rhode et Herrera, 1988).

LA CONCENTRATION MOYENNE CALCULÉE SUR 6 ANS
(1982 à 1987) DE $XSO_4^=$ DANS LES PRÉCIPITATIONS (mg/l)

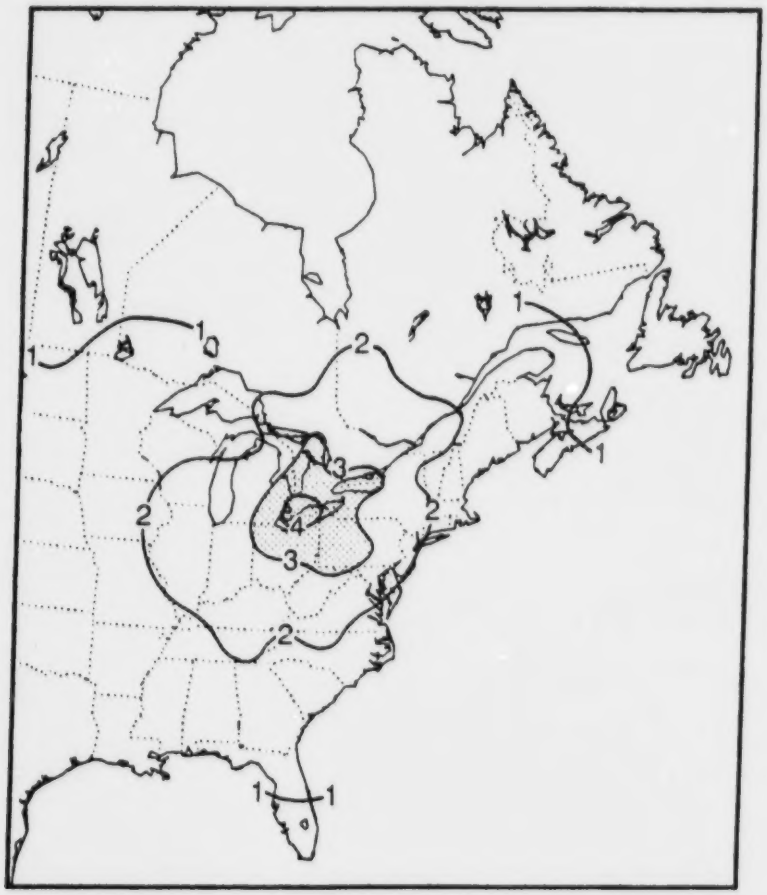


Figure 3.2.2 Configurations des concentrations moyennes pondérées de $SO_4^=$ dans les précipitations non marines pour l'est de l'Amérique du Nord (1982-1987).

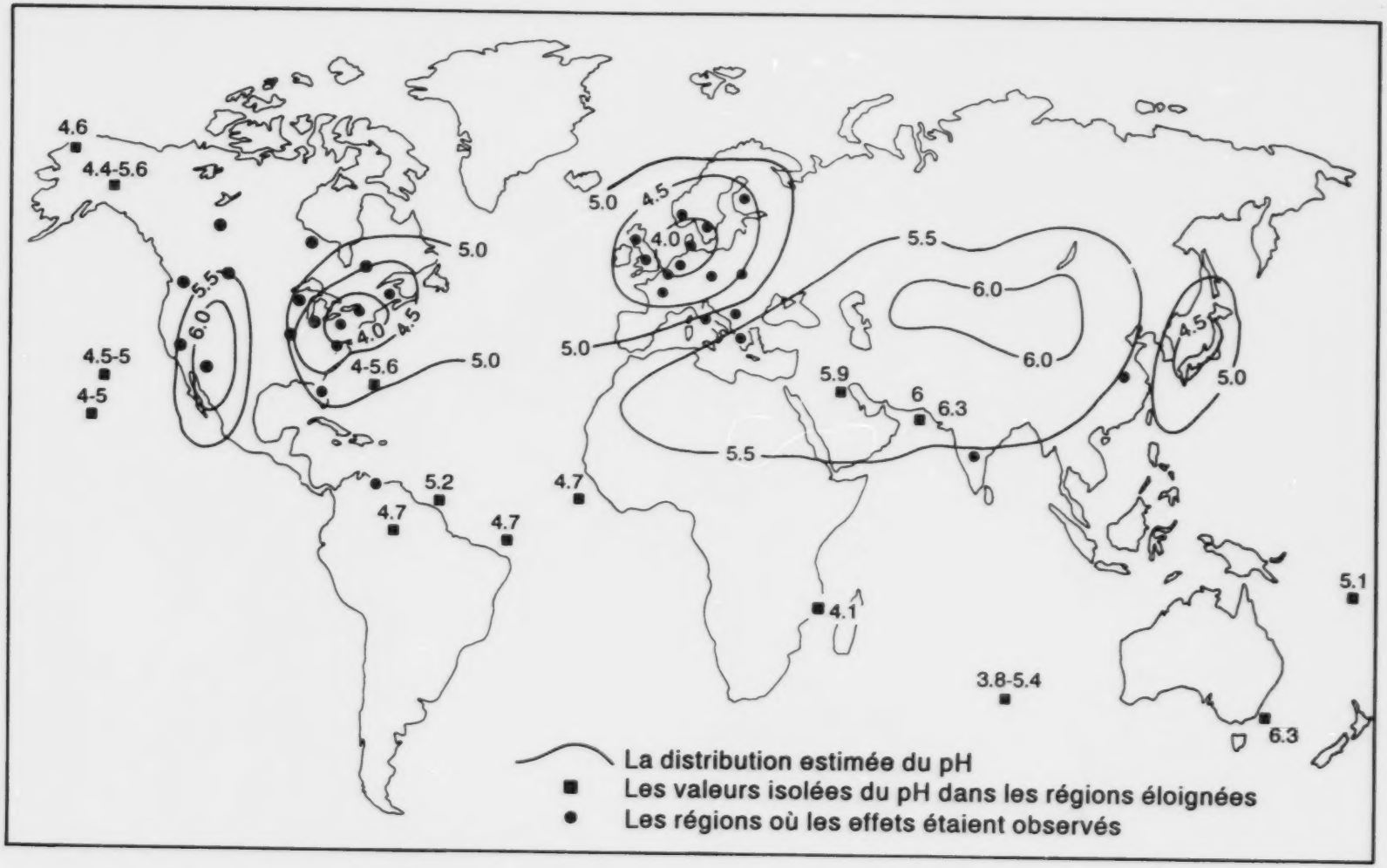


Figure 3.2.3 Tableau de la nature des pluies acides à l'échelle du globe au début des années 1980.

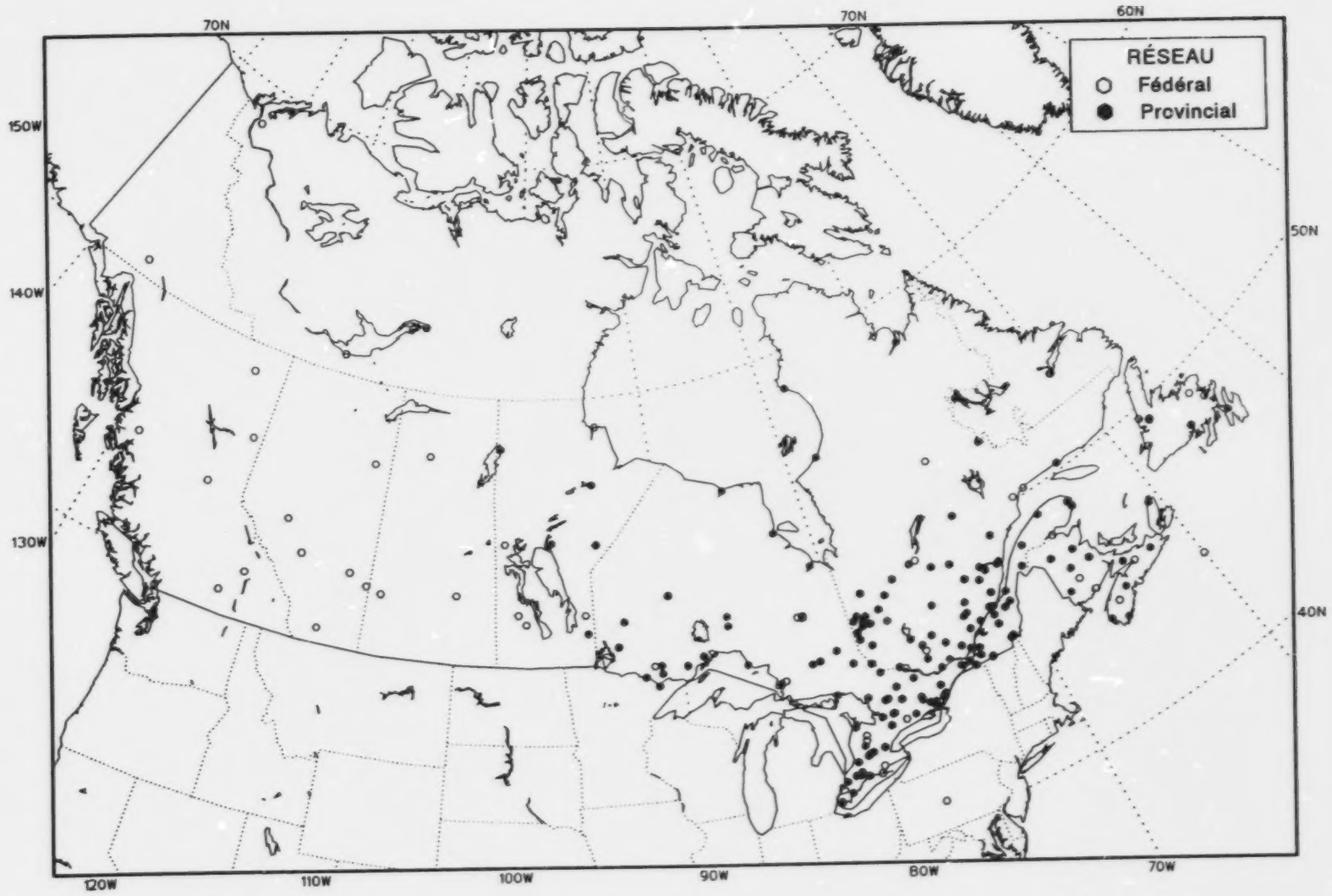


Figure 3.2.4 Stations d'étude de la chimie des précipitations utilisées dans la base de données NATCHEM (NATCHEM 1980-1987).

3.2.2.a ÉMISSIONS

Les données sur les émissions de SO_2 et de NO_x en Amérique du Nord pour les années de base 1980 et 1985 et sur les tendances observées dans les émissions entre 1980 et 1985 ont été colligées et établies à partir d'un certain nombre de rapports et de documents. Pour les États-Unis, les données sur les émissions de 1980 se fondent sur les versions 5.0 et 5.2 de l'inventaire des émissions du NAPAP (National Acid Precipitation Assessment Program des États-Unis) et les données sur les émissions de 1985 reposent sur l'inventaire 1985 du NAPAP tel que signalé par Zimmerman et collaborateurs (1988). Les données sur les tendances aux États-Unis pour les années 1981 à 1984 se fondent sur l'information du rapport annuel (NAPAP, 1985) et sur l'information contenue dans le National Air Quality and Emissions Trends Report, 1986 (EPA, 1988). Pour le Canada, les données ont été colligées à partir des données sur les émissions établies par les gouvernements fédéral et provinciaux pour la période de 1980 à 1985.

Entre 1980 et 1985, les émissions globales de SO_2 en Amérique du Nord ont diminué de 16 pour cent environ. Les émissions de SO_2 de 1985 étaient 24,6 millions de tonnes, ce qui représente une diminution par rapport aux 29,1 millions de tonnes de 1980. Aux États-Unis, les émissions de SO_2 ont baissé d'environ 15 pour cent (de 24,5 à 20,9 millions de tonnes) et au Canada, d'environ 20 pour cent (de 4,6 à 3,7 millions de tonnes).

On a établi les répartitions spatiales des émissions de SO_2 pour 1980 et 1985 à partir des régions émettrices d'Amérique du Nord qu'on avait précédemment définies pour l'année de base 1980 (MDI, 1982). Ces répartitions sont reproduites aux figures 3.2.5 et 3.2.6 ainsi que les changements en pourcentage survenus dans les émissions au cours de la période 1980 à 1985 (figure 3.2.7). En général, les émissions de SO_2 ont baissé dans la plupart des régions d'Amérique du Nord entre 1980 et 1985. Il s'est produit des variations importantes à l'échelle régionale. Par exemple, des baisses de l'ordre de 35 à 40 pour cent dans les émissions ont été observées dans les États du Pacifique ainsi qu'en Floride et au Michigan. Dans la région de la vallée de l'Ohio, les émissions ont baissé d'environ 5 pour cent dans le nord jusqu'à 15 à 20 pour cent environ dans le sud. Au Canada, les émissions ont diminué d'environ 15 à 20 pour cent dans les régions à émissions très denses de l'Ontario et de 15 à 60 pour cent dans les régions à émissions très denses du Québec. Les tendances des émissions annuelles enregistrées entre 1980 et 1985 apparaissent aux tableaux 3.2.1 et 3.2.2. Aux États-Unis, l'ensemble des émissions de SO_2 a diminué régulièrement de 1980 à 1985. Au Canada, les émissions de SO_2 ont atteint un minimum en 1982 pour augmenter légèrement par la suite.

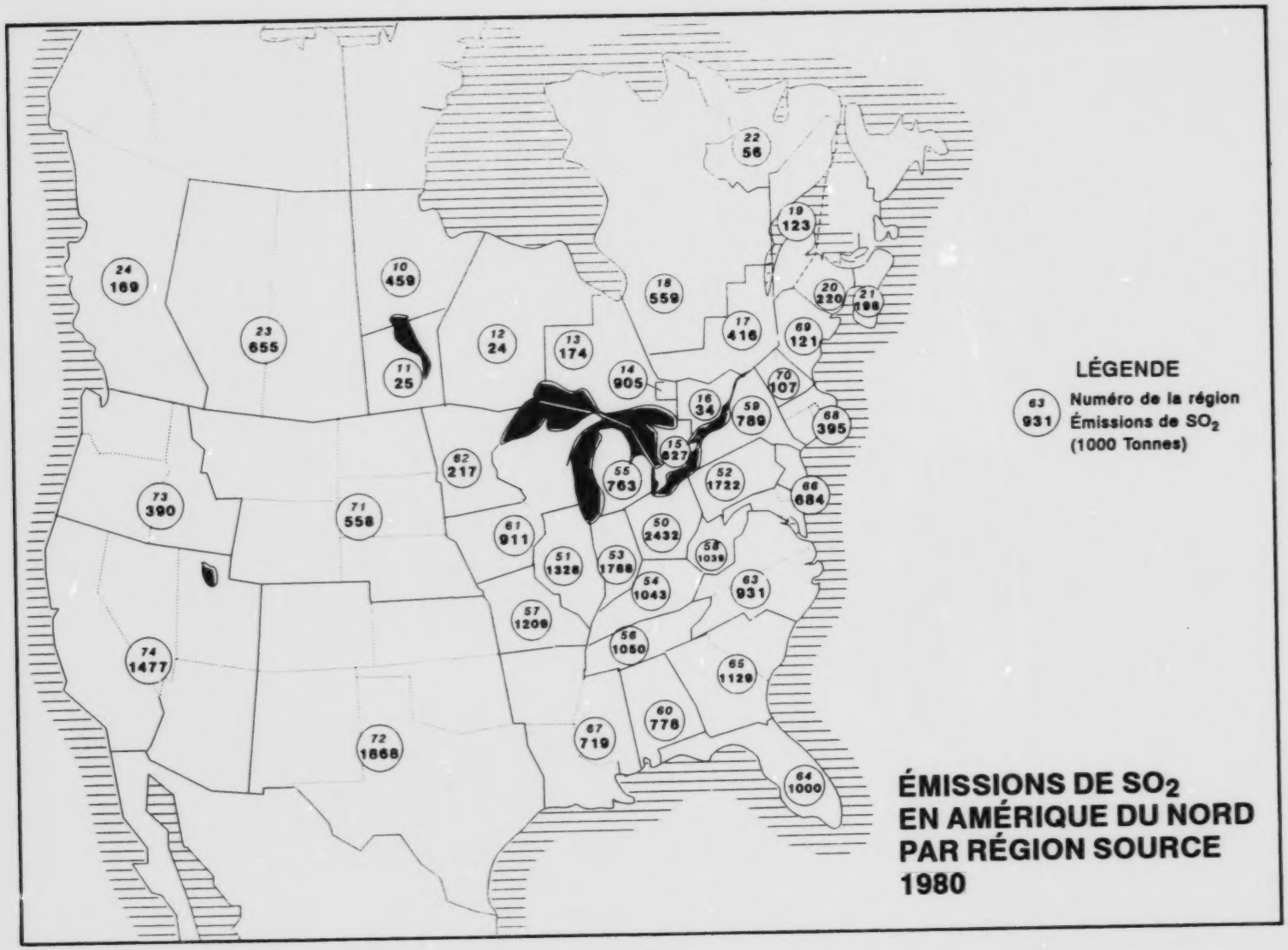


Figure 3.2.5 Émissions de SO_x en Amérique du Nord par région source : année 1980.

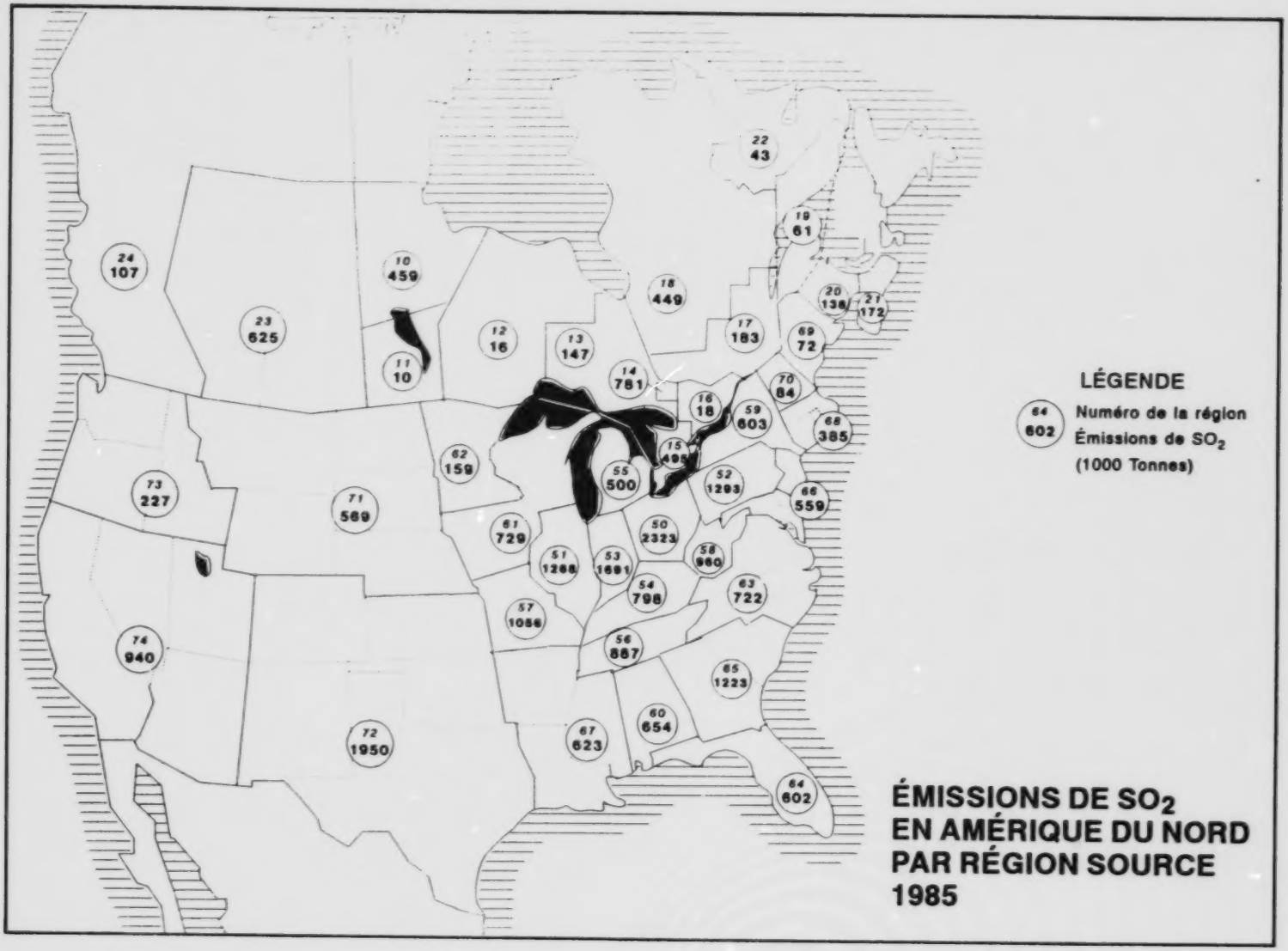


Figure 3.2.6 Émissions de SO_x en Amérique du Nord par région source : année 1985.

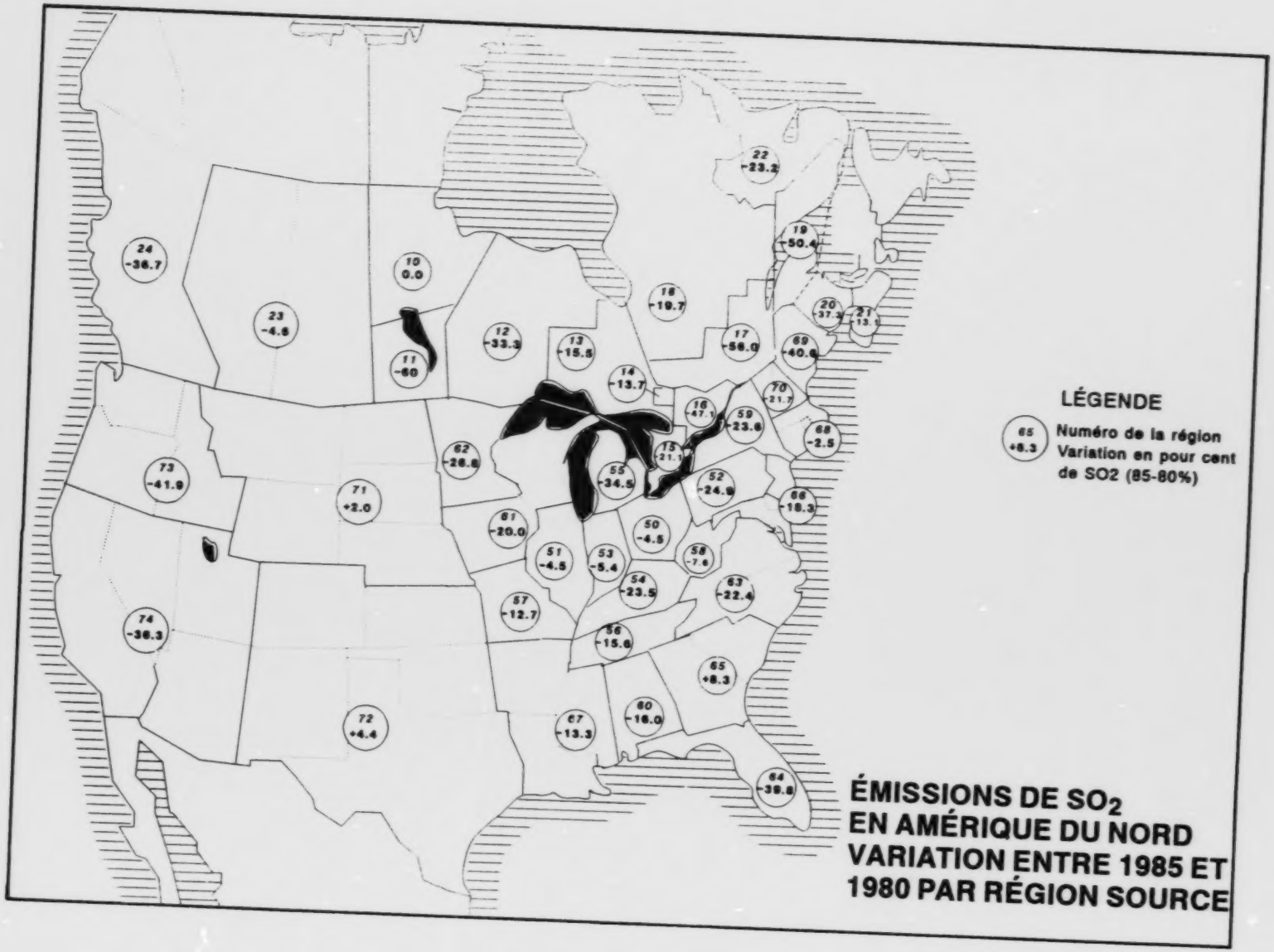


Figure 3.2.7 Différences entre 1985 et 1980 dans les émissions de SO_x en Amérique du Nord, présentées par région source.

Tableau 3.2.1

Émissions de SO_x au Canada de 1980 à 1985 (par région émettrice - 1 000 tonnes/année)

RÉGION - PROVINCE		1980	1981	1982	1983	1984	1985	(85-80)%
10	Nord du MANITOBA	459	399	343	400	456	459	0.0
11	Sud du MANITOBA	25	22	19	9	10	10	-60.0
	Total partiel	484	421	362	409	466	469	-3.1
12	Nord-Ouest de l'ONTARIO	24	22	15	14	18	16	-33.3
13	Nord-Est de l'ONTARIO et Sud de l'ALGOMA	174	162	112	128	158	147	-15.5
14	SUDBURY	905	845	586	684	842	781	-13.7
15	Sud-Ouest de l'ONTARIO et TORONTO	627	585	407	433	533	495	-21.1
16	Sud-Est de l'ONTARIO	34	31	22	16	20	18	-47.1
	Total partiel	1764	1645	1142	1275	1571	1457	-17.4
17	MONTRÉAL et la VALLÉE DU ST-LAURENT (QUÉ.)	416	346	283	246	202	183	-56.0
18	NORANDA et le Centre-Nord du QUÉBEC	559	516	559	494	489	449	-19.7
19	BAIE DE GASPÉ (QUÉ.)	123	140	90	52	46	61	-50.4
	Total partiel	1098	1002	932	792	737	693	-36.9
20	NOUVEAU-BRUNSWICK	220	221	206	172	162	138	-37.3
21	NOUVELLE-ÉCOSSE	193	193	179	175	201	170	-11.9
	Î.-P.-É.	5	3	3	2	2	2	-60.0
	Total partiel	198	196	182	177	203	172	-13.1
22	TERRE-NEUVE ET LABRADOR	56	41	42	36	38	43	-23.2
23	SASKATCHEWAN,	55	56	82	97	111	86	56.4
	ALBERTA	600	543	504	513	517	539	-10.2
	Total partiel	655	599	586	610	628	625	-4.6
24	C.-B., T.N.-O. et YUKON	169	166	160	155	151	107	-36.7
Total du CANADA		4644	4291	3612	3625	3625	3704	-20.2

Tableau 3.2.2

Émissions de SO_x aux États-Unis de 1980 à 1985 (par région émettrice - 1 000 tonnes/année)

	RÉGION/ÉTAT	1980	1981	1982	1983	1984	1985	(80-85)%
50	OHIO	2432	2480	2399	2335	2425	2323	-4.5
51	ILLINOIS	1328	1261	1275	1352	1313	1268	-4.5
52	PENNSYLVANIE	1722	1586	1534	1551	1485	1293	-24.9
53	INDIANA	1788	1674	1513	1579	1764	1691	-5.4
54	KENTUCKY	1043	1085	994	818	765	798	-23.5
55	MICHIGAN	763	826	786	783	790	500	-34.5
56	TENNESSEE	1050	1000	758	859	833	887	-15.6
57	MISSOURI	1209	1175	1196	1144	1161	1056	-12.7
58	Ouest de la VIRGINIE	1039	1030	967	971	985	960	-7.6
59	NEW-YORK	789	800	744	717	748	603	-23.6
60	ALABAMA	778	770	616	695	714	654	-16.0
61	WISCONSIN et IOWA	911	851	796	808	854	729	-20.0
62	MINNESOTA	217	200	178	160	171	159	-26.8
63	VIRGINIE et CAROLINE du Nord	931	896	842	764	779	722	-22.4
64	FLORIDE	1000	1009	915	843	818	602	-39.8
65	GÉORGIE et CAROLINE du Sud	1129	1221	1132	1104	1198	1223	8.3
66	MARYLAND, DEL, N.J. et D.C.	684	644	622	629	561	559	-18.3
67	ARKANSAS, LOUISIANE et MISSISSIPI	719	639	624	587	630	623	-13.3
68	MASS., CONN., et R.I.	395	377	386	358	370	385	-2.5
69	MAINE	121	103	102	81	84	72	-40.6
70	VERMONT, NEW-HAMPSHIRE	107	92	84	85	101	84	-21.7
71	États Centrals du Nord-Ouest*	558	548	532	502	567	569	2.0
72	États Centrals du Sud-Ouest**	1868	1872	1823	1822	1938	1950	4.4
73	États qui bordent le Pacifique du Nord-Ouest***	390	400	366	355	353	227	-41.9
74	États qui bordent le Pacifique du Sud-Ouest****	1477	1626	1365	1242	1203	940	-36.3
	Total des ÉTATS-UNIS	24448	24167	22552	22144	22610	20877	-14.6

* Nebraska, Nord du Dakota, Sud du Dakota, Montana, Wyoming
** Oklahoma, Kansas, Colorado, Le Nouveau-Mexique, Texas
*** Washington, Idaho, Oregon
**** Californie, Nevada, Utah, Arizona

Tableau 3.2.3

Émissions de NO_x au Canada de 1980 à 1985 (par région émettrice - 1 000 tonnes/année)

	RÉGION/PROVINCE	1980	1981	1982	1983	1984	1985	(85-80)%
10	Nord du MANITOBA	6	6	5	5	4	5	-13.2
11	Sud du MANITOBA	74	72	70	75	72	80	8.3
12	Nord-Ouest de l'ONTARIO	19	20	20	27	29	29	49.0
13	Nord-Est de l'ONTARIO et ALGOMA	20	20	20	23	24	24	23.0
14	SUDBURY	11	11	11	10	10	10	-5.4
15	Sud-Ouest de l'ONTARIO et TORONTO	440	441	448	421	438	442	0.5
16	Sud-Est de l'ONTARIO	76	76	77	76	79	80	5.7
17	MONTRÉAL, ST-LAURENT	295	265	242	229	224	209	-29.1
18	NORANDA & N.C. QUÉBEC	13	12	11	14	14	13	0.6
19	BAIE DE GASPÉ	23	21	19	20	19	18	-22.5
20	NOUVEAU-BRUNSWICK	58	57	52	48	49	46	-20.7
21	NOUVELLE-ÉCOSSE et Î.-P.-É.	93	73	78	79	82	84	-9.6
22	TERRE-NEUVE et LABRADOR	36	35	34	33	33	35	-1.4
23	SASKATCHEWAN et ALBERTA	555	535	547	542	565	606	9.1
24	C.-B., T.N.-O. et YUKON	242	230	251	255	260	279	15.5
	Total du CANADA	1959	1872	1884	1856	1901	1960	0.1

Source Canadienne:

- Données de l'Environnement Canada (EC) (sauf les données de l'Ontario viennent du Ministère de l'Environnement de l'Ontario), à l'exclusion des émissions des incendies dans les forêts.

- Partage en régions: MDI, publié en 1980, présente les rapports pour les années 1981 et 1982, et EC, en 1985, présente les rapports pour les années 1983 et 1984.

Source Américaine:

- Les versions 5.0 et 5.2 du rapport NAPAP publié en 1980.

- Les données des tendances nationales (de 1977 à 1986) publiées par NAPAP de 1981 à 1984.

- En 1985, inventaire publié par NAPAP, EPA-600/7-88-022, Novembre 1988.

Tableau 3.2.4

Émissions de NO_x aux États-Unis de 1980 à 1985 (par région émettrice - 1 000 tonnes/année)

	RÉGION/ÉTAT	1980	1981	1982	1983	1984	1985	85-80%
50	OHIO	1104	1099	1055	1034	1015	924	-16.33
51	ILLINOIS	883	878	844	826	936	881	-0.10
52	PENNSYLVANIE	944	940	903	884	937	869	-8.00
53	INDIANA	714	710	682	668	759	799	12.00
54	KENTUCKY	500	498	478	468	516	472	-5.60
55	MICHIGAN	649	646	620	607	612	597	-7.90
56	TENNESSEE	482	480	461	451	500	464	-3.70
57	MISSOURI	499	496	477	467	517	486	-2.40
58	Ouest de la VIRGINIE	418	416	400	392	408	419	0.10
59	NEW-YORK	668	665	639	626	726	568	-15.00
60	ALABAMA	442	440	422	414	485	426	-3.60
61	WISCONSIN et IOWA	647	644	618	606	638	557	-13.90
62	MINNESOTA	332	331	318	311	331	323	-2.90
63	VIRGINIE et CAROLINE du Nord	831	827	794	778	822	808	-2.70
64	FLORIDE	646	643	617	605	614	619	-4.20
65	GÉORGIE et CAROLINE du Sud	788	784	753	737	748	771	-2.10
66	MARYLAND, DEL, NJ et DC	808	804	772	756	717	671	-16.90
67	ARKANSAS, LOUSIANE et MISSISSIPI	1101	1096	1053	1031	1101	1125	2.20
68	MASS., CONN., et R.I.	406	404	388	380	406	395	-2.70
69	MAINE	61	61	58	57	59	61	-0.30
70	VERMONT, NEW- HAMPSHIRE	94	93	89	88	95	72	-22.60
71	États Centrals du Nord-Ouest*	705	702	674	660	776	725	2.80
72	États Centrals du Sud-Ouest**	4403	4381	4209	4122	3924	3533	-19.80
73	États qui bordent le Pacifique du Nord-Ouest***	556	553	532	521	477	484	-13.00
74	États qui bordent le Pacifique du Sud-Ouest****	1720	1712	1644	1611	1509	1609	-6.50
	Total des États-Unis	20397	20300	19500	19100	19628	18658	-8.50

* Nebraska, Nord du Dakota, Sud du Dakota, Montana, Wyoming
** Oklahoma, Kansas, Colorado, Le Nouveau-Mexique, Texas
*** Washington, Idaho, Oregon
**** Californie, Nevada, Utah, Arizona

Tableau 3.2.5

Émissions annuelles de SO_2 et de NO_x dans l'est de l'Amérique du Nord[1], de 1980 à 1987[2]
(Millions de tonnes par année)

	1980	1981	1982	1983	1984	1985	1986	1987	change[3]
SO_2 total annuel	24.0	23.3	21.3	21.1	21.7	20.2	19.2	19.9	
moyenne de 3 ans		22.9					19.8		-13.5%
NO_x total annuel	14.2	14.1	13.5	13.2	14.0	13.4	13.5	13.9	
moyenne de 3 ans		13.9					13.6		-2.0%

1 Régions situées à l'est de la vallée du Mississipi aux États-Unis et à l'est de la frontière Saskatchewan-Manitoba au Canada.

2 Les données pour la période 1980 à 1985 apparaissant dans les tableaux (de 3.2.1 à 3.2.4) sont issues des rapports du NAPAP. Les données de 1986 et de1987 viennent du NEDS (Novembre 1989).

3 Le changement en pour cent de la moyenne de 1980-1982 par rapport à la moyenne de 1985-1987. Les réductions significatives des émissions de SO_2 au Canada, entre 1980 et 1985, étaient dans le secteur des fonderies de métaux non ferreux. Cette diminution peut être reliée aux progrès des opérations et aux initiatives régulières. La réduction des émissions, venant des combutions des carburants dans les sources fixes, à l'exclusion des utilités, étaient principalement à cause de la limitation du contenu du soufre, de la diminution de l'emploi du charbon dans l'industrie et du travail pour obtenir des carburants plus purs.

Entre 1980 et 1985, d'importantes réductions dans les émissions de SO_2 au Canada ont été enregistrées dans le secteur de la fonte de métaux non ferreux. Ces réductions peuvent être attribuées au perfectionnement des procédés de décontamination et aux mesures de réglementation. La diminution des émissions liées à la combustion dans les sources fixes (services publics exclus) est largement imputable à la réglementation de leur teneur en soufre, à la baisse de l'utilisation du charbon dans les activités industrielles et à un mouvement vers des combustibles plus propres.

Aux États-Unis, la réduction des émissions de SO_2 entre 1980 et 1985 reflète l'utilisation de dispositifs de désulfuration des gaz de combustion dans les centrales électriques alimentées au charbon ainsi qu'une diminution de la teneur moyenne des combustibles en soufre. Pour d'autres sources fixes de combustion, une baisse dans la combustion du charbon a été enregistrée. Les émissions dues aux procédés industriels ont également diminué considérablement suite aux mesures de contrôle mises en oeuvre.

En Amérique du Nord, on évalue l'ensemble des émissions de NO_x à 22,3 millions de tonnes environ en 1980 et à 20,6 millions de tonnes environ en 1985, les émissions de 1985 représentant une réduction de 8 pour cent par rapport à celles de 1980. Entre 1980 et 1985, les émissions de NO_x aux États-Unis ont baissé d'environ 9 pour cent (passant de 20,4 à 18,7 millions de tonnes), alors qu'elles étaient presque constantes au Canada (1,96 million de tonnes). Les répartition spatiales des émissions de NO_x en 1980 et en 1985 sont reproduites aux figures 3.2.8 et 3.2.9, en même temps que la variation en pourcentage des émissions au cours de la période 1980 à 1985 (figure 3.2.10). En général, les variations d'émissions de NO_x étaient moins prononcées que les variations d'émissions de SO_2. Aux États-Unis, les diminutions maximales observées au-dessus d'importantes régions émettrices étaient d'environ 15 à 20 pour cent. Généralement, les baisses d'émissions de NO_x étaient d'environ 5 pour cent. Au Canada, les niveaux des émissions de NO_x étaient presque constants entre 1980 et 1985. Les tendances dans les émissions annuelles de NO_x entre 1980 et 1985 sont fournies aux tableaux 3.2.3 et 3.2.4. Aux États-Unis, les émissions globales de NO_x ont baissé avec régularité, sauf une légère augmentation observée en 1984. Au Canada, les émissions de NO_x sont restées relativement constantes au cours de la période de six ans.

Au Canada, les variations d'émissions de NO_x entre 1980 et 1985 ont été négligeables. Aux États-Unis, une légère diminution a été enregistrée, qui semble être reliée aux diminutions notées dans les émissions des véhicules sur les routes.

Le tableau 3.2.5 illustre les émissions annuelles de SO_2 dans la partie est de l'Amérique du Nord entre 1980 et 1987. On peut également y voir les moyennes calculées sur trois ans (années 1980 à 1982 et 1985 à 1987), dont on se servira par la suite.

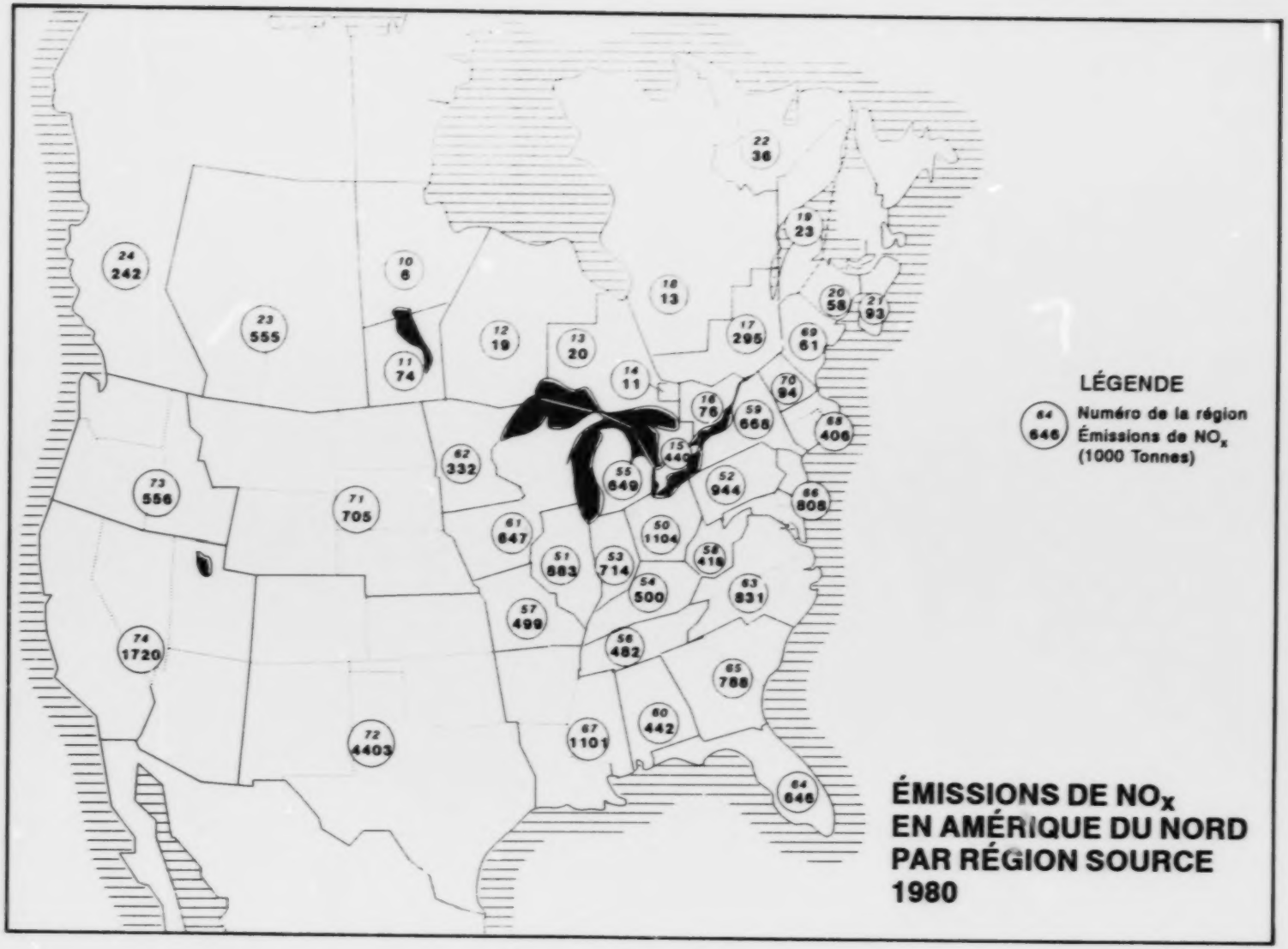


Figure 3.2.8 Émissions de NO_x en Amérique du Nord par région source : année 1980.

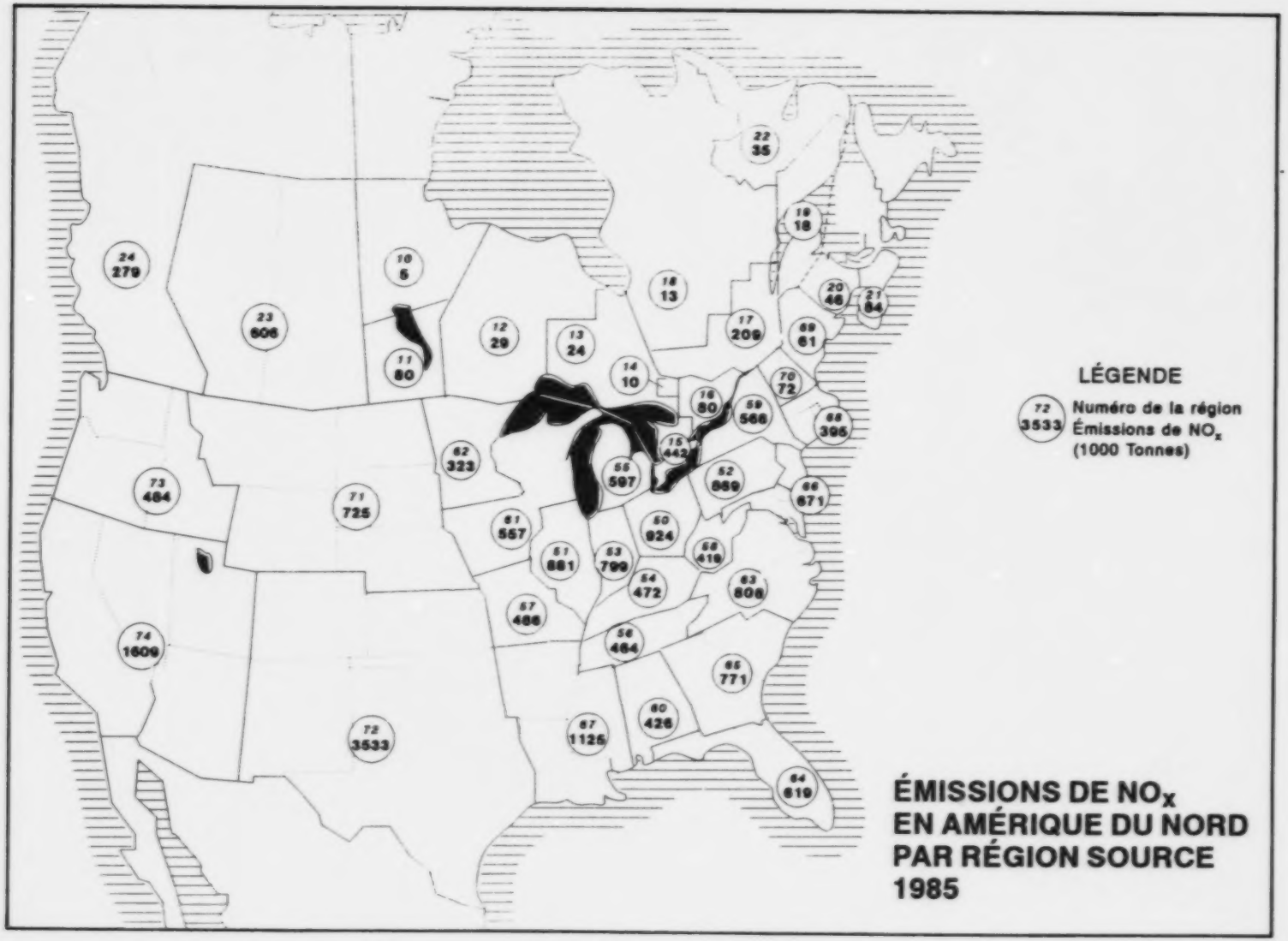


Figure 3.2.9 Émissions de NO_x en Amérique du Nord par région source : année 1985.

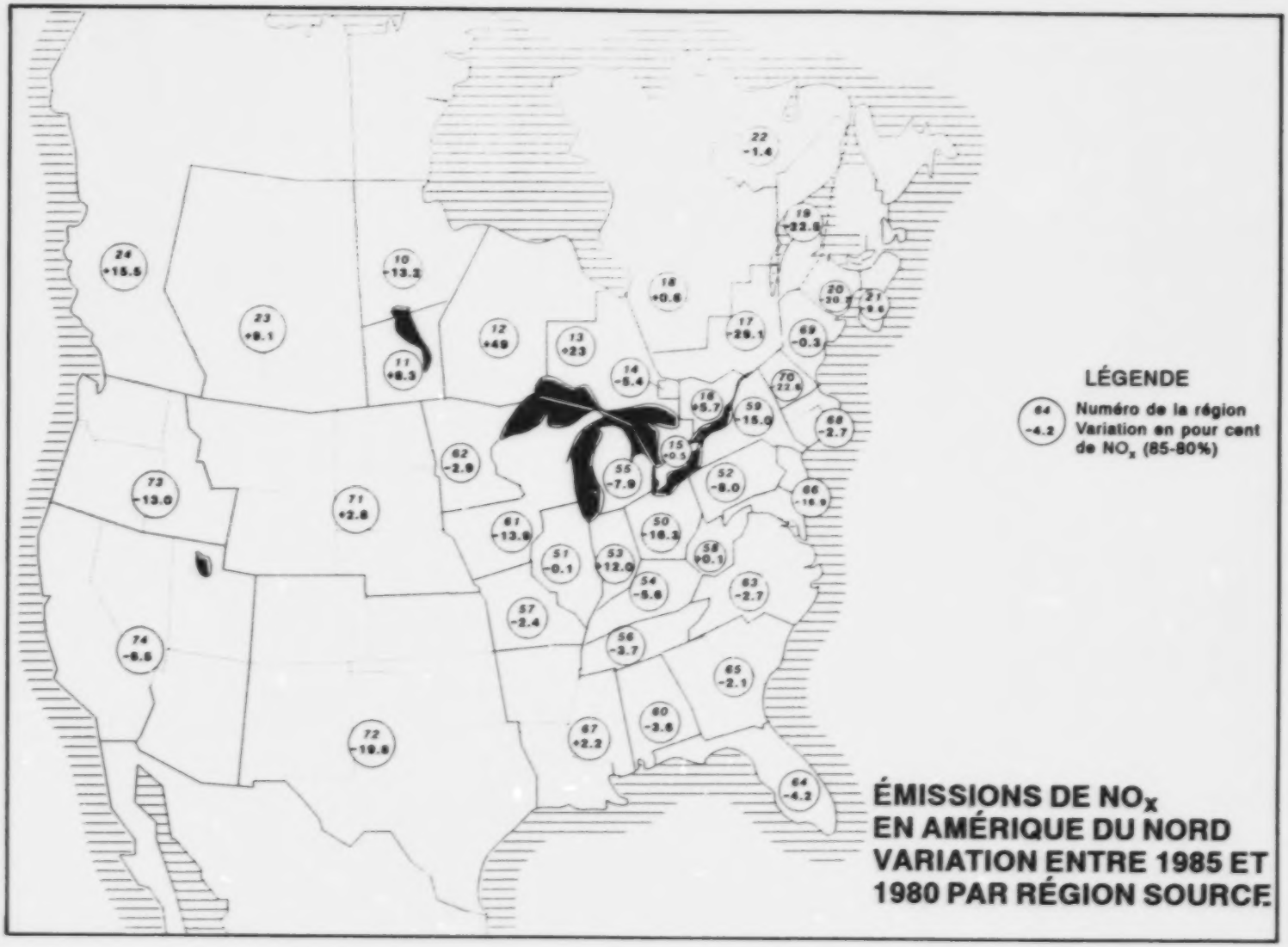


Figure 3.2.10 Différences entre 1985 et 1980 dans les émissions de SO_x en Amérique du Nord, présentées par région source.

3.2.2.b RÉPARTITIONS DE LA COMPOSITION DES PRÉCIPITATIONS ET DES DÉPÔTS ACIDES AU CANADA

Dans cette section, on examine les mesures de dépôts humides. On ne s'arrêtera pas aux dépôts secs principalement à cause du manque de données à ce sujet dans l'est du Canada. On abordera sommairement l'importance relative des dépôts humides et secs à l'annexe 3A. La conclusion générale est la suivante : pour le soufre, les dépôts humides l'emportent sur les dépôts secs alors que pour l'azote, les deux types de dépôts ont une importance approximativement égale.

On a produit des cartes illustrant la répartition spatiale des concentrations dans les précipitations (moyenne pondérée) et des dépôts humides de tous les principaux ions, pour la période 1980 à 1987. Les cartes ont plus d'un usage : elles illustrent l'importance et la variabilité des dépôts humides dans la partie est de l'Amérique du Nord et elles renseignent sur le rapport entre les émissions anthropogèniques d'oxydes de soufre et d'azote d'une part et la chimie des précipitations/dépôts humides d'autre part. Les distributions spatiales et leur rôle dans l'établissement de ce rapport sont étudiés dans cette section. Les cartes ne sont pas destinées à refléter le rôle joué par la topographie dans l'augmentation des dépôts humides à de plus fortes altitudes. On peut s'attendre à ce que les dépôts d'éléments acides augmentent dans les régions montagneuses de la partie est de l'Amérique du Nord et ce, pour deux raisons. Premièrement, les précipitations augmenteront avec l'altitude pour les secteurs qui nous intéressent et, deuxièmement, les montagnes disparaissent souvent dans le brouillard, auquel cas il y a apport direct d'eau issue du brouillard dans les forêts. L'augmentation des dépôts humides n'est pas facile à quantifier à cause de la complexité du terrain et du manque généralisé de stations en haute altitude. Cependant, les répercussions de cette augmentation pour le sud du Québec seront étudiées d'assez près ci-dessous.

Les données de 11 réseaux canadiens et de 3 réseaux américains de surveillance des dépôts humides ont servi à établir les distributions spatiales de la chimie des précipitations et des dépôts humides. Ce ne sont pas tous les réseaux qui ont été en service pendant toute la période visée. Par conséquent, le nombre des stations de surveillance a varié d'une année à l'autre. Le tableau 3.2.6 résume la situation (noms, sigles et périodes d'exploitation des réseaux en service à divers moments, au cours des années 1980). Il est à signaler que la plupart des réseaux sont entrés en service au début de la décennie 1980, le nombre des stations de surveillance s'accroissant progressivement pour atteindre un nombre maximal en 1987. C'est ce que l'on peut voir à la figure 3.2.11 qui indique la série des stations de surveillance mises à contribution dans l'établissement de chaque carte, de 1980 à 1987. Toutes les cartes ont été produites à partir de la base nationale de données sur la chimie atmosphérique (NATChem), une base de données fédérale/provinciale du Service de l'environnement atmosphérique d'Environnement Canada.

Tableau 3.2.6

Réseaux de surveillance des dépôts humides

Acronyme du réseau	Le nom du réseau	Période des données utilisées
	CANADA	
CANSAP	*Canadian Network for Sampling Precipitation*	1980-1983
APN	*Canadian Air and Precipitation Network*	1980-1983
CAPMoN	*Canadian Air and Precipitation Monitoring Network*	1983-1987
MAPMN	*Manitoba Acid Precipitation Monitoring Network*	1984-1986
APIOS-C	*Acidic Precipitation in Ontario Study - Cumulative Network*	1980-1987
APIOS-D	*Acidic Precipitation In Ontario Study - Daily Network*	1980-1987
REPQ	Réseau d`échantillonnage des précipitations du Québec	1981-1987
NBPN	*New Brunswick Precipitation Network*	1981-1987
NSPMN	*Nova Scotia Precipitation Monitoring Network*	1980-1987
NPMN	*Newfoundland Precipitation Monitoring Network*	1987
EPSN	*Environmental Protection Service Network*	1981-1987
	ÉTATS-UNIS	
NADP/NTN	*National Atmospheric Deposition Program/National Trends Network*	1980-1987
MAP3S	*Multi-State Atmospheric Pollution Power Production Study Network*	1980-1987
UAPSP	*Utility Acid Precipitation Study Program Network*	1980-1987

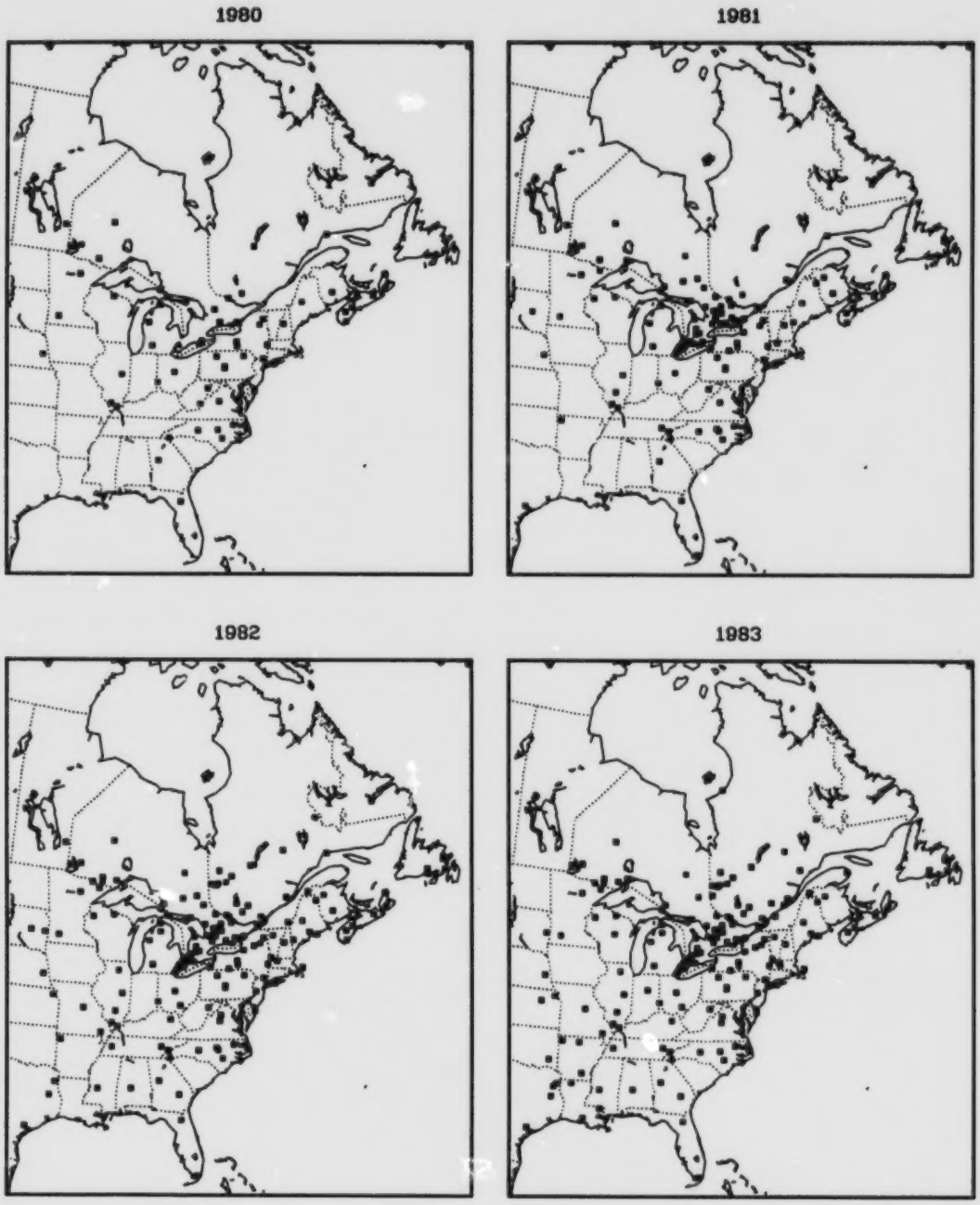


Figure 3.2.11a Emplacements de surveillance des dépôts humides au Canada et aux États-Unis utilisés pour produire les configurations spatiales des concentrations et des dépôts de 1980 à 1983.

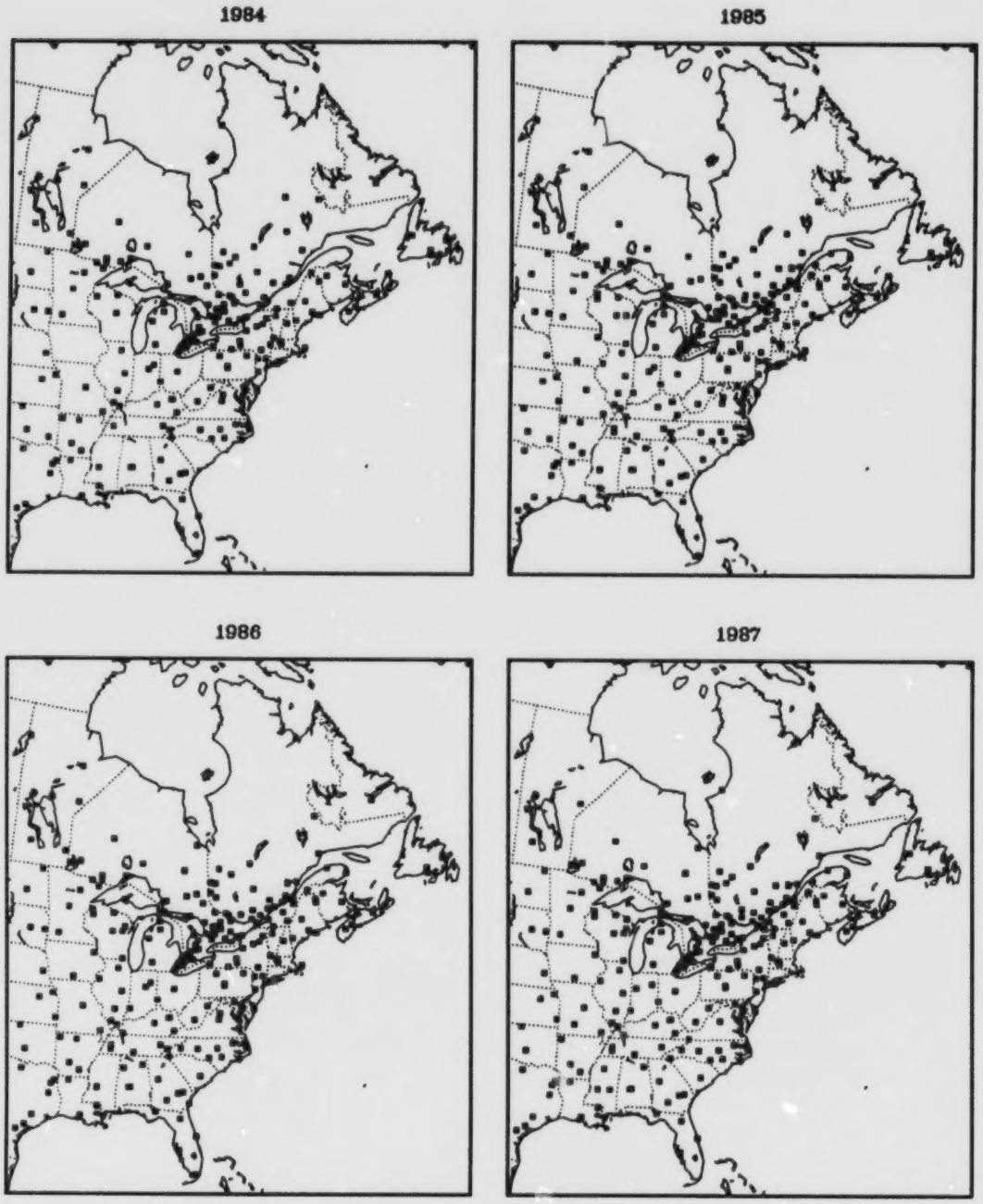


Figure 3.2.11b Emplacements de surveillance des dépôts humides au Canada et aux États-Unis utilisés pour produire les configurations spatiales des concentrations et des dépôts de 1984 à 1987.

Distributions spatiales de la chimie des précipitations et des dépôts humides

Les deux types de distributions spatiales suivantes ont été établis à partir des données des réseaux:

- des cartes annuelles des concentrations dans les précipitations (moyenne pondérée) et des dépôts humides, pour chaque année de la période 1980 à 1987;

- des cartes des moyennes calculées sur six ans pour les concentrations dans les précipitations (moyenne pondérée) et les dépôts humides de la période 1982 à 1987.

Les deux types de distributions sont décrits ci-dessous.

Distributions des concentrations et des dépôts annuels

Les cartes des concentrations annuelles moyennes dans les précipitations (moyenne pondérée) et des dépôts annuels de $SO_4^{=}$, NO_3^{-}, H^+, NH_4^+, Ca^{++}, Mg^{++}, Na^+, Cl^- et K^+ sont présentées à l'annexe B1. On trouvera aux figures 3.2.12 et 3.2.13 les distributions relatives au $SO_4^{=}$ excédentaire (c.-à-d. au $SO_4^{=}$ corrigé des effets du sel marin). Les données sur les concentrations annuelles dans les précipitations (moyenne pondérée) et sur les dépôts annuels, mises à contribution dans la production des cartes, viennent de deux sources : de réseaux individuels et de la base de données de l'Acid Deposition System (ADS) des États-Unis. Les données issues de la base de données de l'ADS renferment des renseignements recueillis par trois réseaux canadiens (RCEPA, EPAO-C et EPAO-D) et par trois réseaux des États-Unis (NADP/NTN, UAPSP, MAP3S). Tous les calculs reliés aux concentrations annuelles dans les précipitations (moyenne pondérée) et aux dépôts humides se fondaient sur les équations recommandées par le Comité de la base de données unifiée Canada/É.-U. sur les dépôts (UDDBC, 1985).

On a vérifié la qualité des données utilisées dans la production des cartes. On a retenu seulement les données répondant à certains critères de complétude sur une base annuelle et de représentativité des stations. Les critères utilisés sont:

1. Pour chacune des années étudiées, le nombre de jours où la hauteur des précipitations a été mesurée doit être égale ou supérieure à 90 pour cent du nombre total de jours de la période considérée.

2. Le hauteur des précipitations associée aux échantillons avec concentrations valables doit avoir représentée au moins 70 pour cent de la hauteur totale des précipitations annuelles.

3. La station de surveillance doit avoir été représentative de la situation à l'échelle régionale en ce sens qu'elle doit avoir une cote de représentativité régionale 1, 2a

ou 2b selon le système de cote défini par le Comité de la base de données unifiée Canada/É.-U. sur les dépôts (UDDBC, 1985).

Des données ne répondant pas à ces critères ont cependant été utilisées. Il s'agit de données recueillies en 1980, 1981 et 1982 à certaines stations du Réseau canadien d'échantillonnage des précipitations. Ces stations dont le nombre varie entre 5 et 9 selon les années considérées ont été clasées non représentatives régionalement. Toutefois, étant donnée qu'aucune autre donnée n'étaient disponible pour certaines régions, ces stations ont été retenues lors de la présente études. Les données de ces stations ont également été mises à contribution dans d'autres activités de cartographie (par exemple Clark et collaborateurs, 1987; Barchet, 1987). Dans quelques cas, des données répondant effectivement aux critères exposés ci-dessus ont été écartées parce qu'elles affichaient des valeurs extrêmement élevées ou faibles ne concordant absolument pas avec les distributions régionales des concentrations ou des dépôts.

Les cartes des dépôts annuels et des concentrations annuelles présentées aux figures 3.2.12 et 3.2.13 ainsi qu'à l'annexe 3B ont été établies à l'aide d'une méthode d'interpolation spatiale (krigeage simple). Cette méthode consistait à utiliser des données provenant de stations de surveillance distancées de façon irrégulière pour évaluer les concentrations et les dépôts à 9 360 points de grille dans la zone couverte par la carte. La valeur associée à chaque point de grille représente une estimation par les moindres carrés établie à partir des mesures provenant de 25 des stations d'échantillonnage les plus près, pondérées par une fonction de la distance des stations par rapport au point de grille. Le système de pondération était fondé sur une équation linéaire décrivant la dépendance fonctionnelle entre la variance des mesures et la distance entre les stations. A partir des valeurs associées aux 9 360 points, on a tracé les isoplèthes des dépôts ou des concentrations constantes selon une méthode de traçage linéaire en courbes de niveau. Tous les détails relatifs à l'interpolation et au traçage des courbes sont fournis par Mathews (1987). Toutes les cartes ont été produites par ordinateur au Service de l'environnement atmosphérique (Environnement Canada), et préparées à la main (avec adaptations mineures) pour publication.

La caractéristique la plus frappante des cartes de concentrations et de dépôts du $SO_4^=$ excédentaire, du $SO_4^=$, du NO_3^- et du H^+ est leur disposition en cercles concentriques déformés. Dans les cartes de dépôts et de concentrations, le centre des cercles concentriques correspond généralement à la partie inférieure de la région canadienne et américaine des Grands Lacs. Les cercles concentriques déformés affichent un gradient bien marqué vers les faibles valeurs sur le pourtour nord, ouest et sud de la carte.

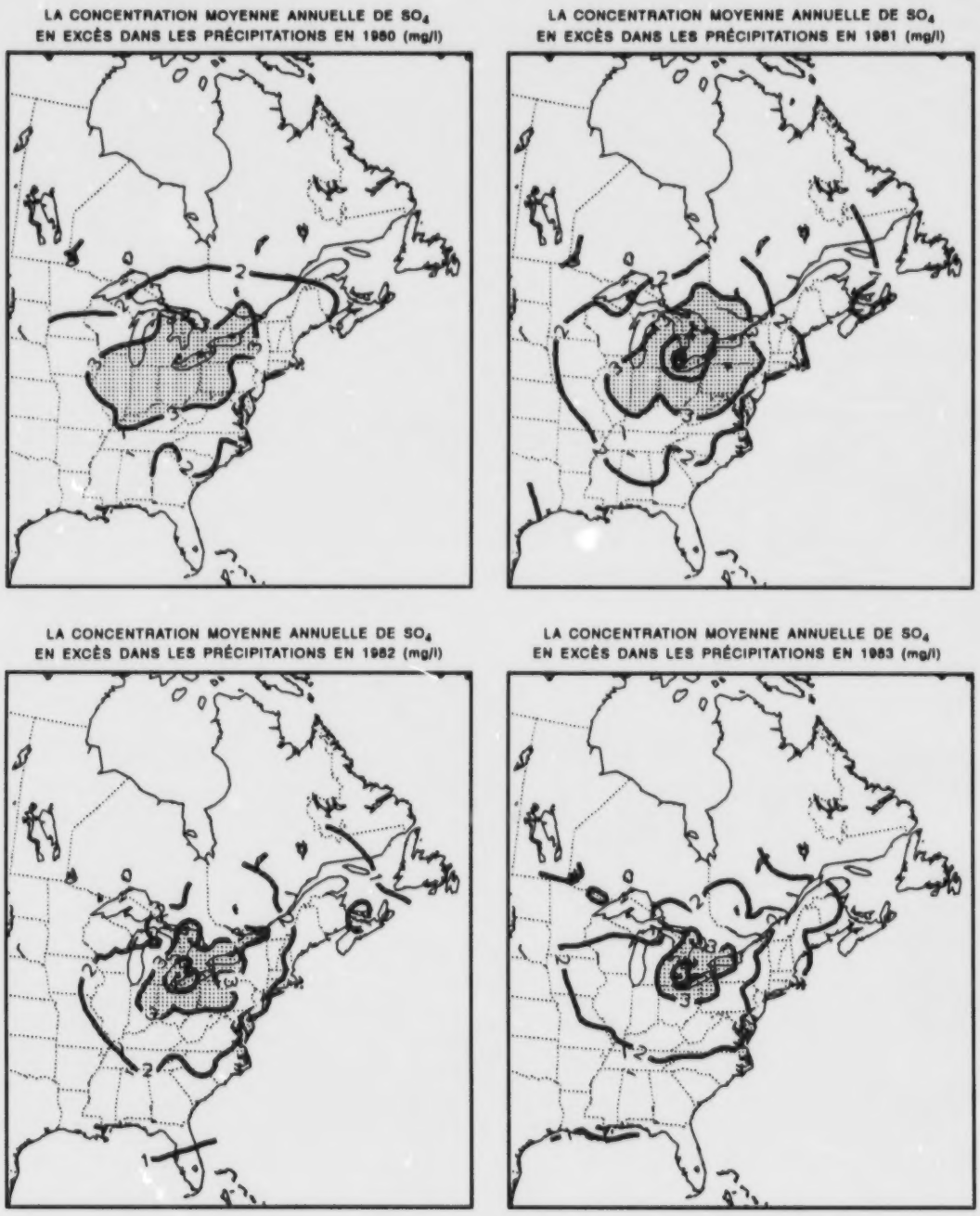


Figure 3.2.12a Configurations des concentrations moyennes annuelles pondérées du $SO_4^=$ en excès (mg/l) dans les précipitations : 1980 à 1983.

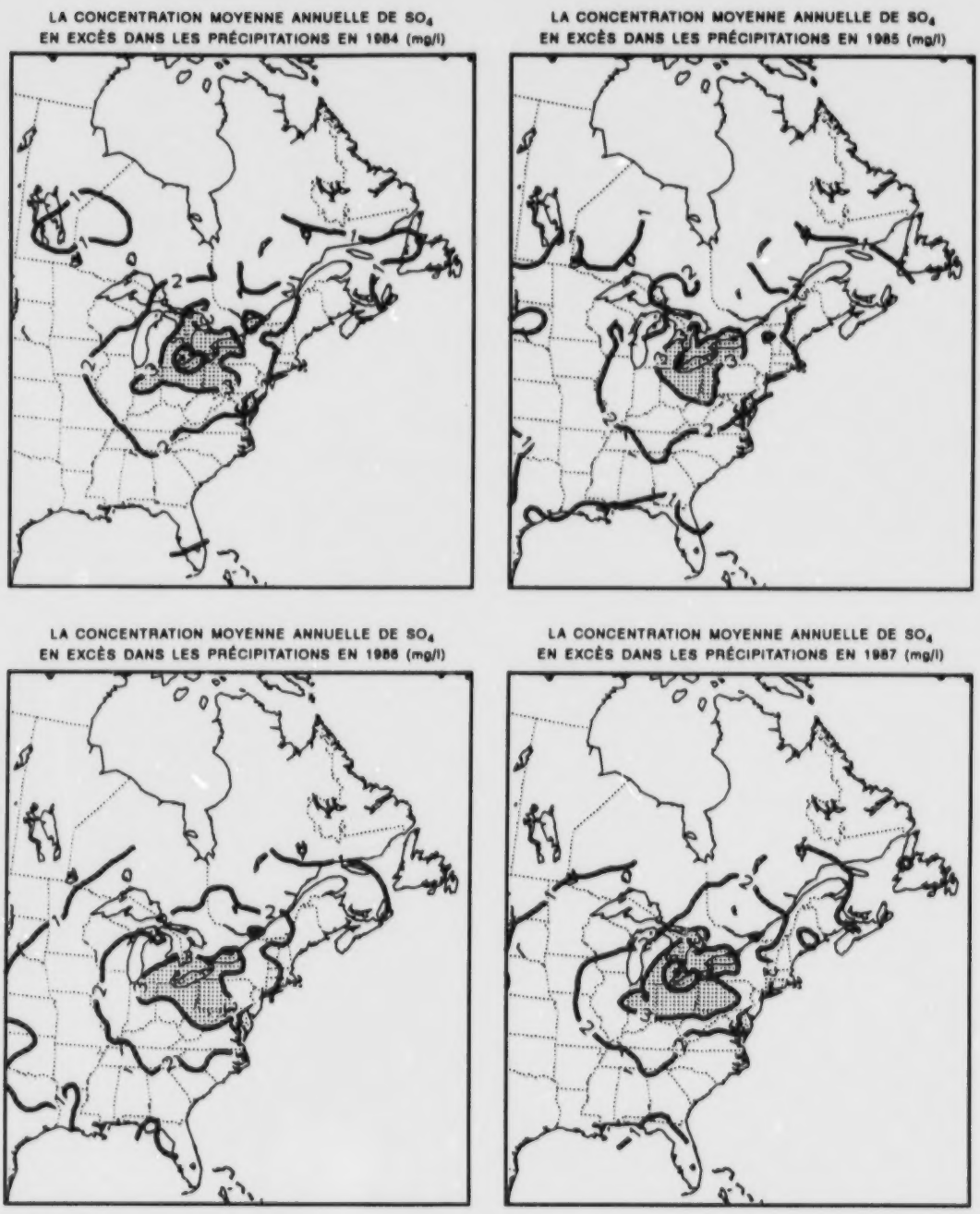


Figure 3.2.12b Configurations des concentrations moyennes annuelles pondérées du $SO_4^=$ en excès (mg/l) dans les précipitations : 1984 à 1987.

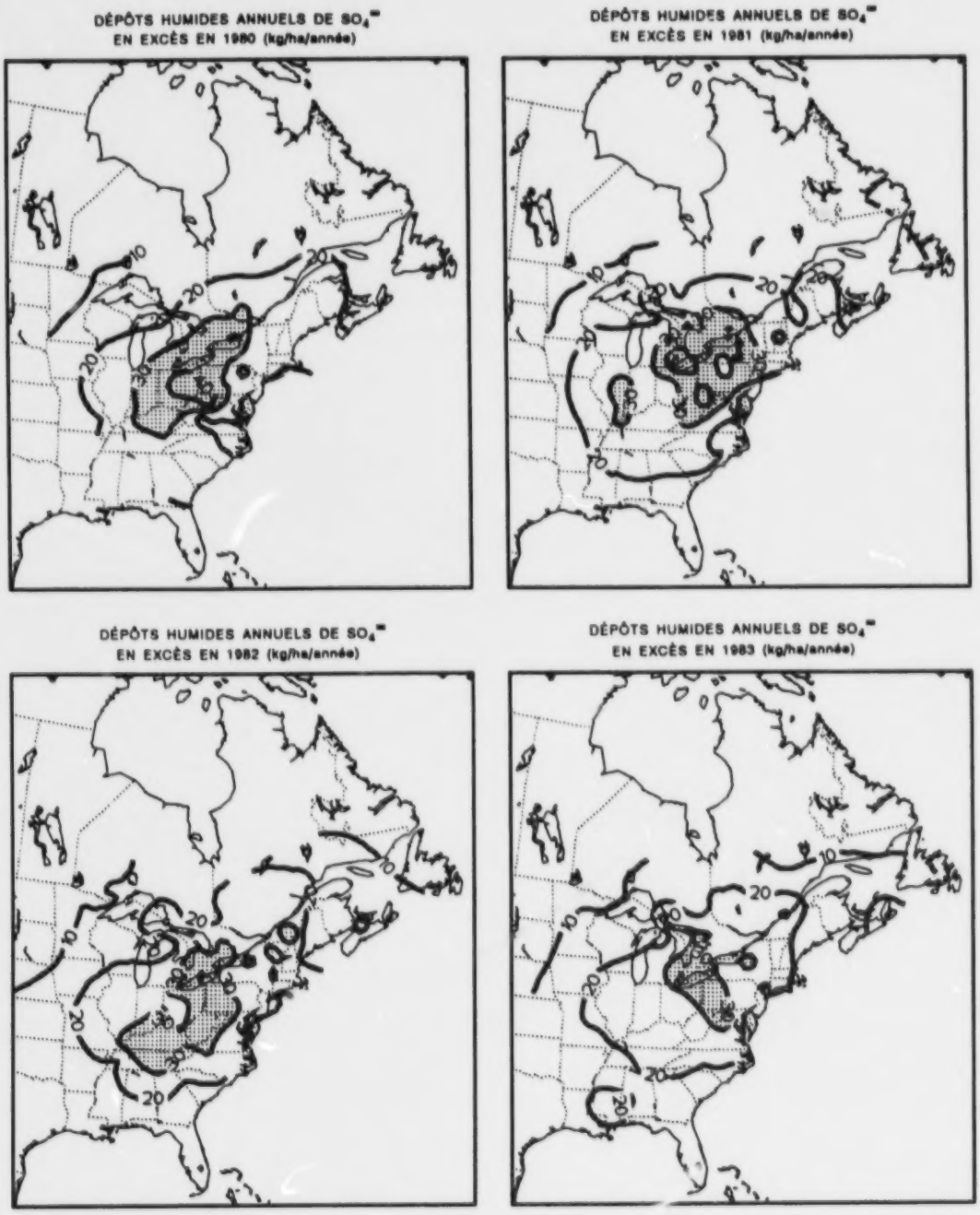


Figure 3.2.13a Configurations des dépôts humides annuels de $SO_4^=$ en excès (kg/ha/année) de 1980 à 1983.

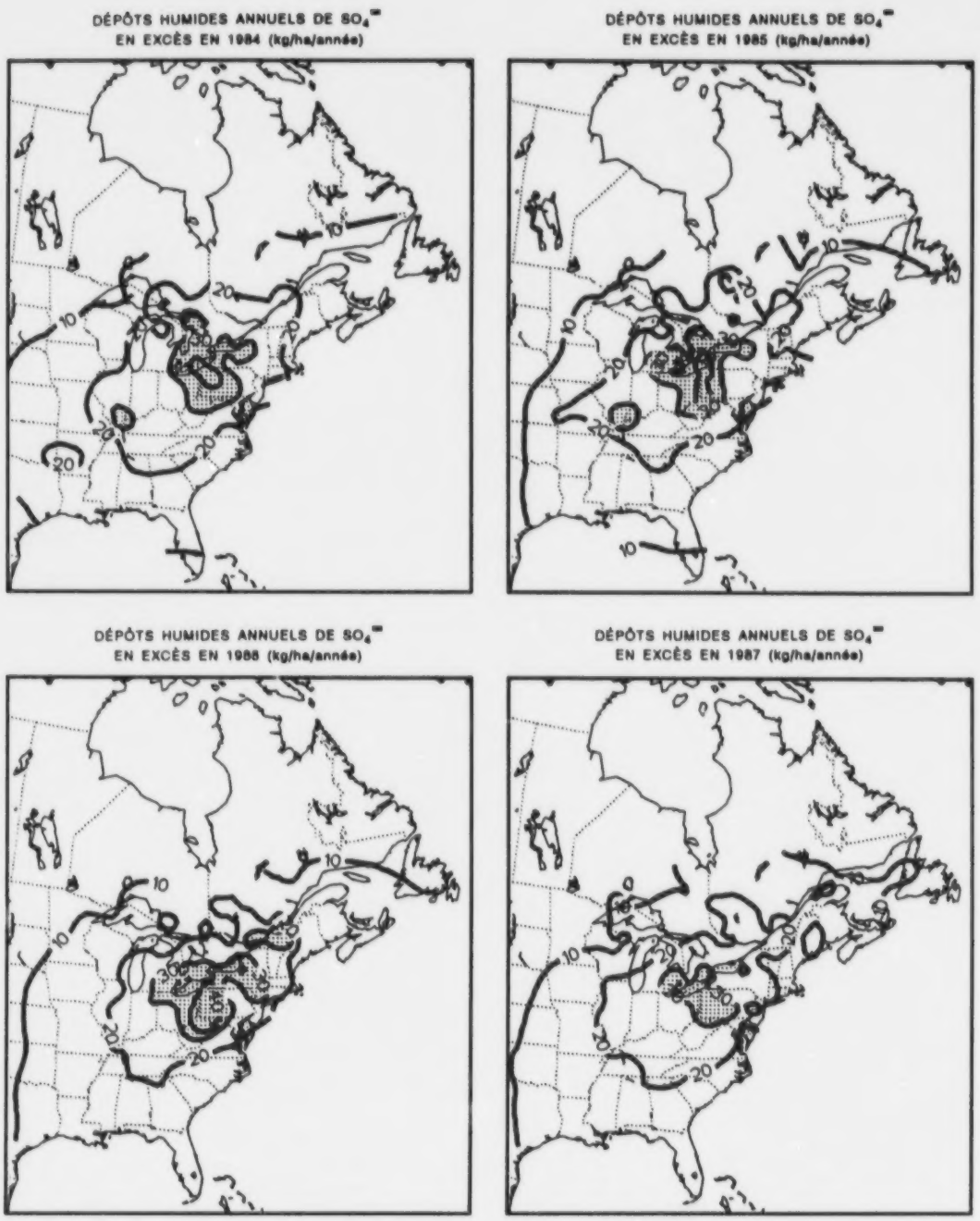


Figure 3.2.13b Configurations des dépôts humides annuels de $SO_4^=$ en excès (kg/ha/année) de 1984 à 1987.

La distribution spatiale des concentrations et des dépôts des quatre ions montre une variabilité considérable d'une année à l'autre tant dans la forme que dans l'amplitude. Par exemple, la forme et l'emplacement des isoplèthes varient d'une année à l'autre et l'amplitude de celles-ci augmente ou diminue, certaines années. Ceci est d'ailleurs illustré à la figure 3.2.13 où l'isoplèthe de 40 kg/ha/année est présent lors de certaines années et est absent lors d'autres années.

Les figures 3.2.14 et 3.2.15 illustrent la variabilité interannuelle des dépôt de nitrate et de sulfate en excès. On peut voir à la figure 3.2.14a l'enveloppe des isoplèthes de dépôts annuels de 20 kg/ha/année pour les années 1980 à 1987 (la zone ombrée représente la région à l'intérieur de laquelle l'isoplèthe de 20 kg/ha/année s'est déplacée au cours des huit années considérées). Les grandes dimensions géographiques de l'enveloppe illustrent clairement la variabilité observée dans l'emplacement des isoplèthes au cours des huit années (la distance entre les positions extrêmes des isoplèthes est généralement de 200 à 1 000 km). Il y a de fortes chances pour que cette variabilité interannuelle s'explique par deux facteurs, l'un systématique et l'autre dû au hasard, le facteur systématique étant une tendance temporelle conduisant à une réduction des superficies qui reçoivent des dépôts supérieurs à 20 kg/ha/année et le facteur imputable au hasard étant une fluctuation annuelle se superposant à cette tendance. La figure 3.2.14 b) montre bien le facteur systématique; elle indique les emplacements de deux isoplèthes moyennes calculées sur 3 ans, la première pour la période 1980 à 1982 et la seconde pour la période 1985 à 1987. On voit tout de suite qu'au cours de la période 1985-1987 l'isoplèthe englobe une région moins étendue que lors des années 1980 à 1982.

De même, la figure 3.2.15 a) montre l'enveloppe des isoplèthes de 15 kg/ha/année de nitrate pour les années 1980 à 1987 et la figure 3.2.15 b) illustre la superposition des isoplèthes moyennes 1980-1982 et 1985-1987. Comme pour le sulfate, l'enveloppe des isoplèthes de dépôts annuels de 15 kg/ha/année couvre une superficie importante, ce qui laisse entrevoir une forte variabilité interannuelle des dépôts de nitrate. Cependant, contrairement à ce qui se passe pour le sulfate, les variations interannuelles des dépôts de nitrate ne semble pas systématiques, car les isoplèthes moyennes pour les périodes 1980-1982 et 1985-1987 sont assez semblables.

La variabilité interannuelle des dépôts, peut être attribuée à plusieurs facteurs, dont les suivants:

- des changements dans les conditions météorologiques (par exemple dans la direction du vent, la température, les précipitations, etc.);
- des changements dans les taux d'émissions et dans la répartition spatiale des émissions;
- des changements dans le nombre et l'emplacement des stations de surveillance (ce facteur a une lourde responsabilité dans les erreurs d'interpolation commises);
- des changements dans la qualité des mesures (par exemple l'amélioration de l'exactitude et de la précision avec le temps).

L'interprétation des distributions spatiales des dépôts, et surtout des changements dans ces distributions avec le temps, est compliquée par cette variabilité interannuelle. On a essayé (figures 3.2.14 b) et 3.2.15 b)) de filtrer les effets des conditions météorologiques et de l'interpolation en calculant une moyenne sur trois ans (1980 à 1982 et 1985 à 1987). Comme on l'a déjà signalé, l'intérêt des deux figures est la contraction apparente de la distribution spatiale des dépôts de sulfate excédentaire du début à la fin des années 1980 et l'absence de contraction observée pour la distribution spatiale du nitrate. Il est convenant de noter que, au cours de cette même période, les émissions de SO_2 ont baissé de façon marquée alors que les émissions de NO_x n'ont accusé aucune baisse. La section 3.2.3 aborde plus en détail le rapport possible entre les émissions et la chimie des précipitations.

Comme on l'a indiqué au début de la section, tout ce qui précède concernait uniquement la chimie des précipitations et les dépôts humides. La chimie de l'air et les dépôts secs n'ont pas été considérés puisque les mesures étaient trop rares pour permettre l'établissement des distributions spatiales couvrant l'est de l'Amérique du Nord. Les effets de la topographie sur la hauteur des précipitations et sur les dépôts attribuables aux nuages et aux brouillards, n'ont pas été abordés non plus.

Cependant, la topographie influencera la distribution spatiale des dépôts dans certaines régions du sud du Québec. Si l'on part du principe que 500 m est une hauteur au-dessus de laquelle on peut s'attendre à une augmentation appréciable des précipitations et à des épisodes de brouillard fréquents, on constate alors qu'il y a trois régions importantes, dans le sud du Québec. La première région a une forme triangulaire. Elle est située au nord-ouest de Montréal et s'étend sur 200 km au nord de Mont-Tremblant. La deuxième suit la frontière est du Québec et jouxte les États du Vermont, du New Hampshire et du Maine. La troisième couvre une forme approximativement carrée de 100 km de côté, au nord de la ville de Québec. Ces régions constituent les zones les plus élevées du terrain montagneux avoisinant les basses terres du St-Laurent. Cette topographie obligera les flux du sud-ouest dans la couche limite à poursuivre leur déplacement vers le nord-est. Vers la fin des années 1985, trois stations ont été créées dans le cadre du Programme de chimie du brouillard en altitude (CHEF) (Schemenauer, 1986) pour examiner les dépôts humides, les concentrations d'ozone et les données météorologiques à des altitudes atteignant 970 m sur le pourtour des basses terres du St-Laurent. Deux de ces stations, Mont-Tremblant et Roundtop Mountain, sont toujours exploitées en 1990.

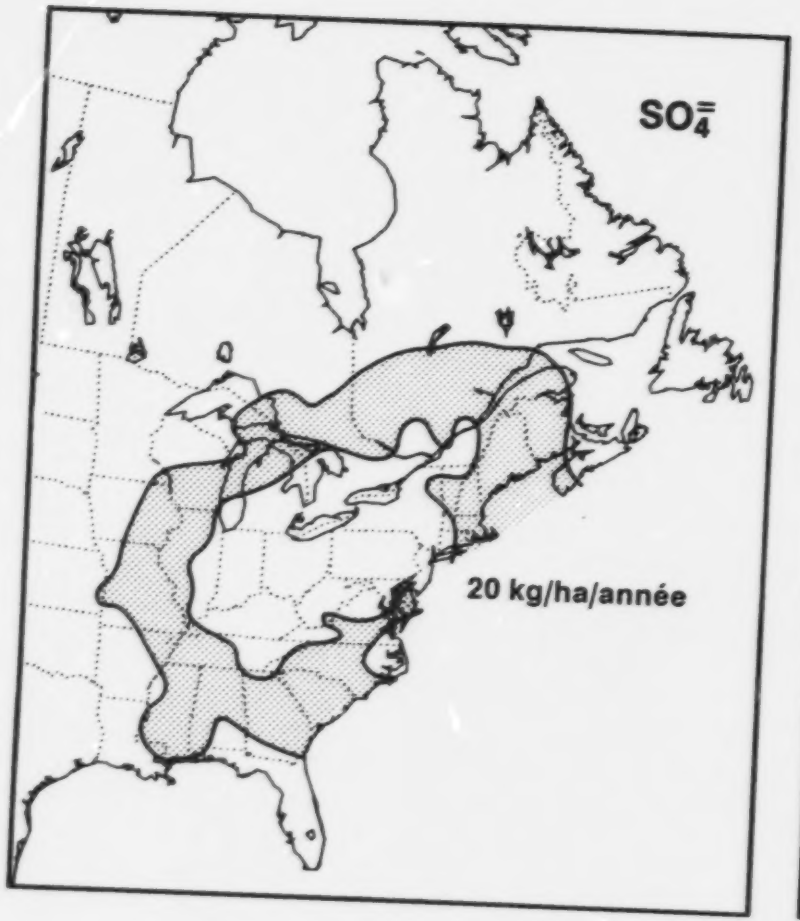


Figure 3.2.14a Enveloppe des isoplèthes des dépôts annuels de sulfates dépassant 20 kg/ha/année pour les années 1980 à 1987.

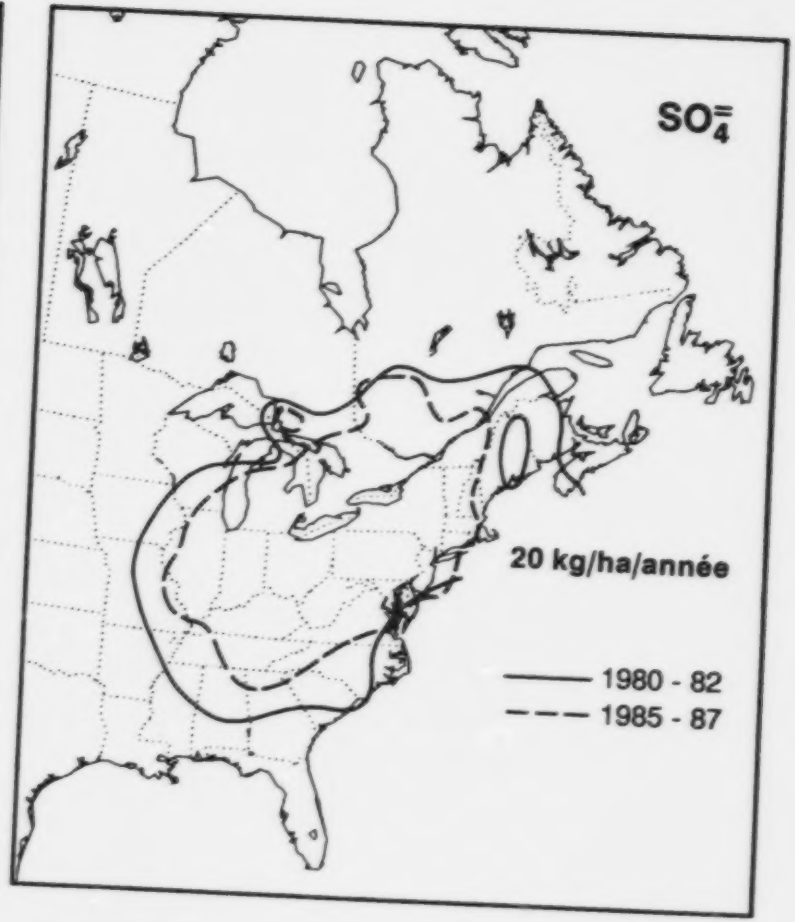


Figure 3.2.14b Superposition des isoplèthes des dépôts annuels de sulfates dépassant 20 kg/ha/année pour les années 1980 à 1982 et 1985 à 1987.

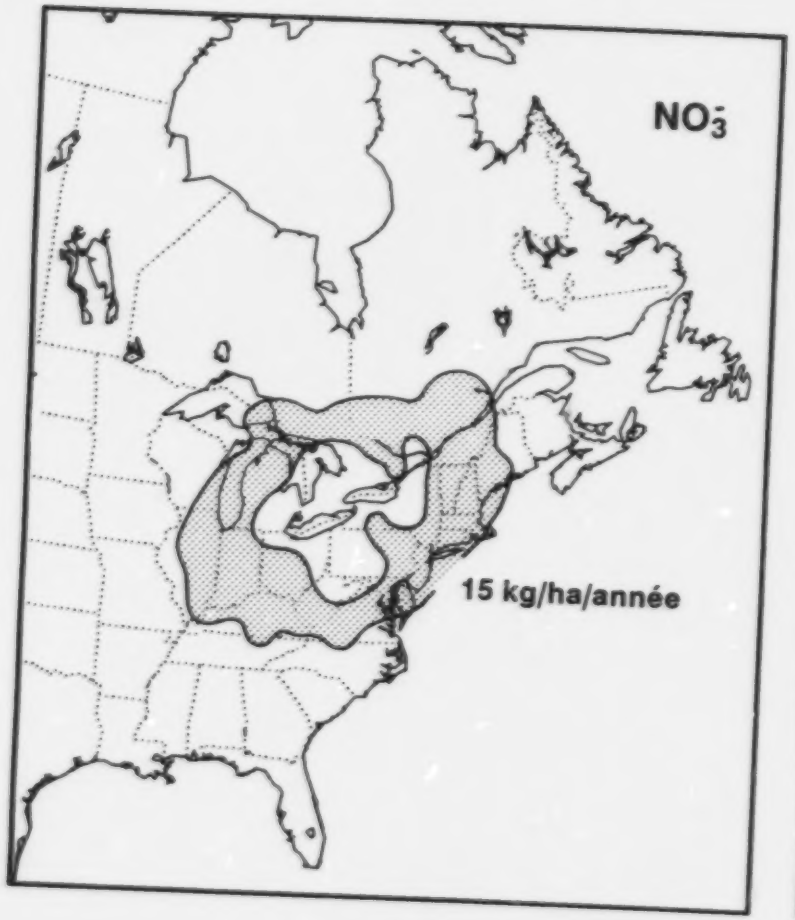


Figure 3.2.15a Enveloppe des isoplèthes des dépôts annuels de nitrates dépassant 15 kg/ha/année pour les années 1980 à 1987.

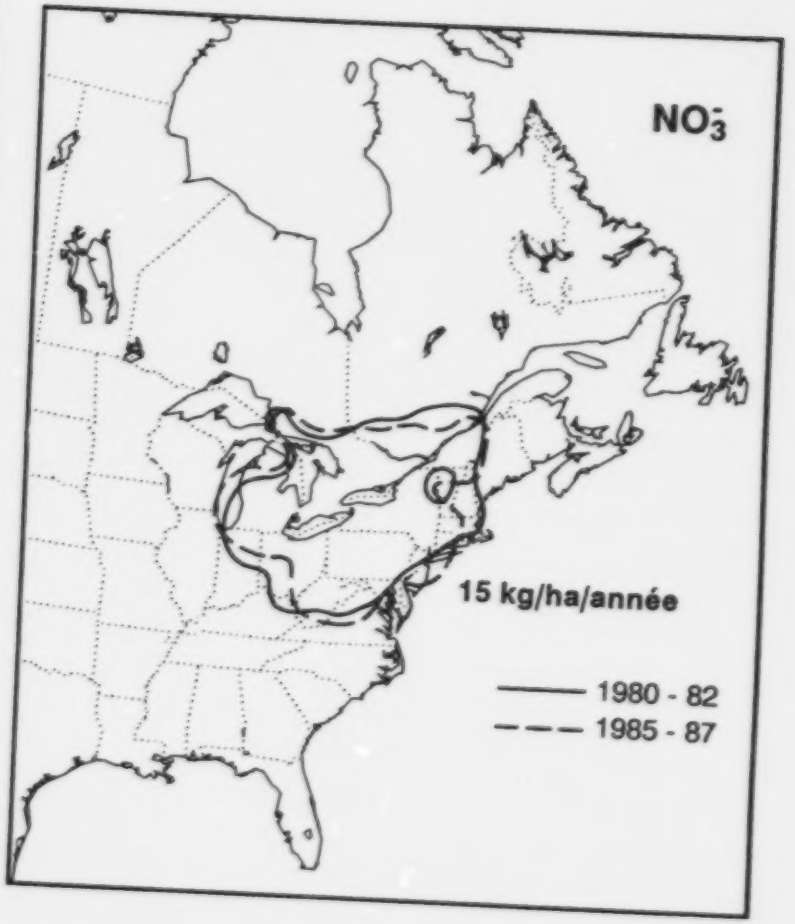


Figure 3.2.15b Superposition des isoplèthes des dépôts annuels de nitrates dépassant 15 kg/ha/année pour les années 1980 à 1982 et 1985 à 1987.

L'augmentation de la hauteur des précipitations avec l'altitude, dans les régions montagneuses, est bien documentée. Dans la région géographique particulière qui nous intéresse, Schemenauer (1986) a signalé une augmentation de la hauteur des précipitations d'environ 38 pour cent à Mont-Tremblant et 55 pour cent à Roundtop Mountain, à environ 600 m au-dessus des stations de la vallée qui, elles, se trouvaient à 250 m au-dessus du niveau de la mer. Vogelman (1982), qui effectuait des études dans les Green Mountains du Vermont, a consigné une augmentation de 20 pour cent de la hauteur des précipitations aux endroits situés entre 550 et 850 m d'altitude. Ainsi, on peut raisonnablement prévoir que les sommets des montagnes du sud du Québec reçoivent des quantités de précipitations qui sont supérieures d'environ 50 pour cent à celles enregistrées dans les stations régulières à basse altitude.

Des différences dans le pH des précipitations (Schemenauer, 1986) et dans la chimie des précipitations (Schemenauer et Winston, 1988; Schemenauer et collaborateurs, 1988) avec l'altitude ont aussi été l'objet d'études pour le sud du Québec. Il ressort de ces études que la chimie des précipitations ne varie pas avec l'altitude. Quand on sait, comme on l'a indiqué ci-dessus, que les précipitations sont plus importantes en altitude, le fait que la chimie des précipitations ne varie pas avec l'altitude suppose que les dépôts humides dus aux précipitations peuvent être jusqu'à 50 pour cent plus élevés dans les régions du sud du Québec situées en altitude qu'on ne l'indique actuellement sur les cartes.

La composition relative des dépôts humides issus du brouillard et des précipitations a été examinée (Barrie et Schemenauer, 1986; Barrie et Schemenauer, 1988). La composition chimique des brouillards à haute altitude, dans le sud du Québec, a été l'objet d'études (Schemenauer, 1986; Schemenauer et Winston, 1988; Schemenauer et collaborateurs, 1988). En général, les concentrations de toutes les espèces ioniques (H^+, NH_4^+, K^+, Ca^{++}, Mg^{++}, $SO_4^=$, NO_3^-, Cl^-) sont 3 à 20 fois supérieures dans l'eau de brouillard que dans les précipitations; ces valeurs varient selon le site et la saison considérée. Le pH du brouillard est inférieur de 0,2 à 0,5 unité (de pH) à celui des précipitations; il se situe habituellement près de 3,8 unités.

Il est très difficile de quantifier les dépôts imputables au brouillard dans une forêt, particulièrement sur un terrain complexe comme celui des régions montagneuses. A ce jour, la plupart des tentatives pour évaluer ces dépôts ont été réalisées à l'aide d'un seul modèle de dépôts ou des variantes de celui-ci (Lovett, 1984). On a aussi essayé de mesurer directement l'eau qui traverse le couvert forestier. À partir de données provenant de stations en haute altitude de la partie est des É.-U. et à l'aide d'un modèle, Mohnen (1988) conclut que l'interception des nuages peut être le processus principal et parfois déterminant de l'apport de composés d'azote et de soufre dans les forêts alpestres. Kroll et Winkler (1989) ont eu recours au modèle de Lovett pour calculer les dépôts humides dus au brouillard dans les forêts allemandes de conifères en haute altitude et ont constaté que les concentrations de sulfate et de nitrate étaient deux fois plus élevées dans les dépôts provenant du brouillard que dans les dépôts dus aux précipitations. Selon des

estimations prudentes de Schemenauer et collaborateurs (1988), le volume d'eau de brouillard intercepté par les forêts en altitude du sud du Québec correspond à 10 pour cent du volume d'eau provenant des précipitations (valeurs observées à basse altitude). Ainsi, vu l'ordre de grandeur des concentrations d'ions en haute altitude, on peut s'attendre à ce que les dépôts de nitrate et de sulfate imputables au brouillard soient à peu près équivalents à ceux des précipitations des zones de faible altitude de la région.

Le résultat net de l'accroissement des précipitations et de l'apport d'eau de brouillard est que les régions du sud du Québec situées en altitude peuvent recevoir 2,5 fois plus de sulfate et de nitrate que les quantités mesurées dans les réseaux de surveillance des régions à faible altitude. Les quantités de sulfate et de nitrate reçues sont en cours d'évaluation. Cependant, il peut s'ensuivre que l'on doive modifier les cartes de dépôts humides de sulfate et de nitrate, reproduits de ce rapport, pour refléter les dépôts plus élevés dans les trois régions à haute altitude mentionnées ci-dessus. De même, les régions côtières des provinces atlantiques qui subissent de vastes brouillards de temps en temps, peuvent recevoir des dépôts élevés d'acides provenant de l'eau de brouillard (Cox et al. 1989). Ce phénomène doit être étudié davantage.

Distributions spatiales moyennes des dépôts et des concentrations, calculées sur six ans

Des distributions spatiales moyennes calculées sur six ans (1982-1987) pour les dépôts et les concentrations ont été établis pour les $SO_4^{=}$ excédentaire, NO_3^{-}, pH, H^{+}, NH_4^{+}, Ca^{++}, Mg^{++}, Na^{+}, Cl^{-} et K^{+}. Les distributions du $SO_4^{=}$ excédentaire, du NO_3^{-} et du H^{+} sont présentés aux figures 3.2.16, 3.2.18 et 3.2.20; les distributions des autres éléments chimiques figurent à l'annexe 3B. En nivelant les disparités d'une année à l'autre, observées dans les distributions annuelles, on fait en sorte que les cartes de moyennes calculées sur six ans donnent une image beaucoup plus nette des caractéristiques spatiales des champs de dépôts et de concentrations de la majeure partie de la décennie. Les distributions spatiales moyennes établies sur six ans ont été créés tout d'abord par l'évaluation des dépôts et des concentrations pour chaque année aux 9 360 points de grille de la superficie couverte par la carte (à l'aide de la méthode de krigeage simple déjà utilisée pour produire les cartes annuelles), puis par l'établissement des valeurs moyennes sur six ans associées aux points de grille. Les isoplèthes moyennes des dépôts et des concentrations sur six ans ont ensuite été obtenues par le traçage des courbes de niveau.

Les principales caractéristiques des dépôts et des concentrations représentés aux figures 3.2.16, 3.2.18 et 3.2.20 sont résumées ci-dessous. Les résumés concernant les autres ions se trouvent à l'annexe 3B. Il est à noter que les cartes sur les moyennes quinquennales des dépôts (1982 à 1986) ont été produites de la même manière et sont fournies à la partie 4 (Milieu aquatique) et 5 (Milieu terrestre) de cette évaluation.

$SO_4^=$ excédentaire (corrigé des effets du sel de mer)

En général, les distributions spatiales moyennes (calculées sur six ans) des dépôts et des concentrations de $SO_4^=$ excédentaire sont semblables (figure 3.2.16). Les concentrations et les dépôts les plus élevés ont été observés dans la région voisine des lacs Ontario et Érié (au Canada et aux É.-U.), alors que les valeurs les plus faibles ont été enregistrées dans les régions nord/ouest du Canada et dans les régions sud/ouest des É.-U.. Les distributions des dépôts et des concentrations sont tous deux légèrement elliptiques et allongés selon un axe orienté du sud-ouest vers le nord-est.

Au cours de la période de 6 ans ayant servi à l'établissement des moyennes, la concentration moyenne la plus forte de $SO_4^=$ excédentaire était légèrement supérieure à 4 mg/l (dans le sud-ouest de l'Ontario) et le dépôt le plus abondant était d'environ 40 kg/ha/année (dans l'ouest de la Pennsylvanie). Les valeurs des dépôts et des concentrations les plus faibles étaient d'environ 0,5 mg/l et 4 kg/ha/année respectivement, dans les secteurs nord-est et nord-ouest de la carte.

Les distributions spatiales des dépôts et des concentrations de $SO_4^=$ excédentaire ainsi que la distribution spatiale des émissions de SO_2 suggère fortement un lien entre les émissions et la chimie des précipitations, ce que l'on peut voir à la figure 3.2.17 où les isoplèthes des concentrations de $SO_4^=$ excédentaire de 2 et 3 mg/l se superposent à la répartition des émissions de SO_2 en 1985. Il est clair que la région entourée par l'isoplèthe de 2 mg/l renferme la plupart des émissions de SO_2 de la partie est de l'Amérique du Nord. De même, la région circonscrite par l'isoplèthe de 3 mg/l correspond très exactement à la région à émissions maximales de l'est de l'Ohio, l'ouest de la Pennsylvanie, l'est du Michigan et le sud-ouest de l'Ontario. Elle correspond également à la région immédiatement en aval d'une région à émissions secondaires élevées située en Illinois et en Indiana.

Fait à signaler à la figure 3.2.17, l'isoplèthe de 2 mg/l traverse le nord de l'Ontario et du Québec où il existait peu de sources émettrices au cours de la période 1982-1987, ce qui porte à croire que la chimie des précipitations et les dépôts humides de ces régions isolées sont fortement influencés par le transport du SO_2 sur de grandes distances à partir des régions à émissions élevées du sud et du sud-ouest. Cette hypothèse est étayée par le fait que, dans ces régions, le flux d'air prédominant, au cours des événements de précipitations, vient du sud et du sud-ouest. La figure 3.2.20 tirée du MDI (1982) illustre pour plusieurs endroits dans l'est du Canada que les masse d'air en provenance du sud et du sud-ouest sont relativement fréquentes. On peut également constater le parallèle évident qui existe entre ces directions empruntées par le flux d'air et les fortes concentrations de $SO_4^=$ dans les précipitations. Des travaux récents de Summers (1987), Samson (1989) et Beattie et Whelpdale (1989) corroborent l'hypothèse selon laquelle l'influence du flux qui vient des secteurs compris entre le sud et l'ouest (en provenance des régions à fortes émissions de SO_2 et se dirigeant vers le sud de l'Ontario, du Québec et des Maritimes) serait prépondérante.

CONCENTRATION MOYENNE CALCULÉE SUR SIX ANS (1982-87) DE $XSO_4^=$ DANS LES PRÉCIPITATIONS (mg/l)

DÉPÔTS MOYENS CALCULÉS SUR SIX ANS (1982-87) DE $XSO_4^=$ (kg/ha/année)

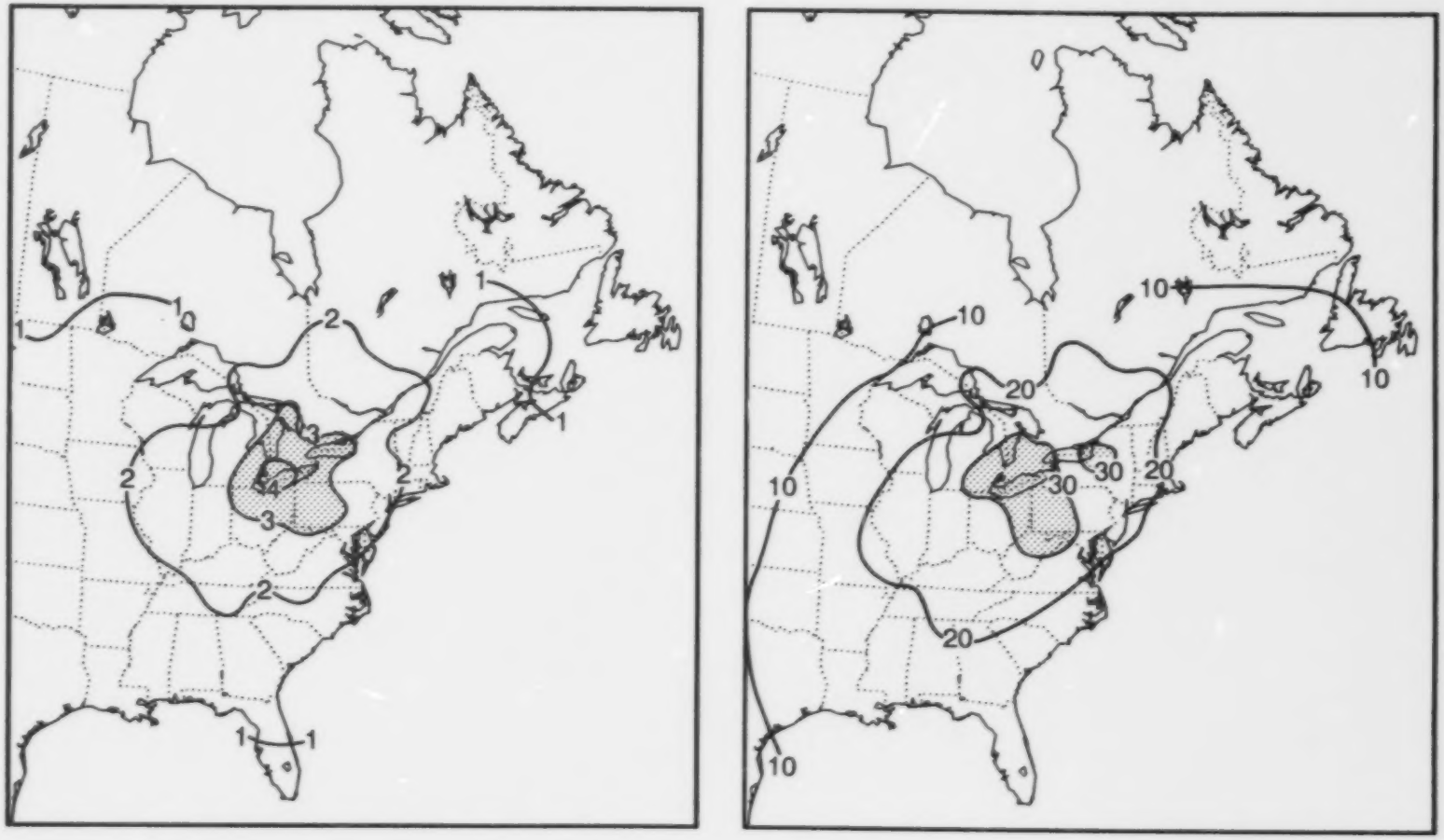


Figure 3.2.16 Configurations des concentrations et des dépôts moyens calculés sur six ans (1982 à 1987) des sulfates en excès.

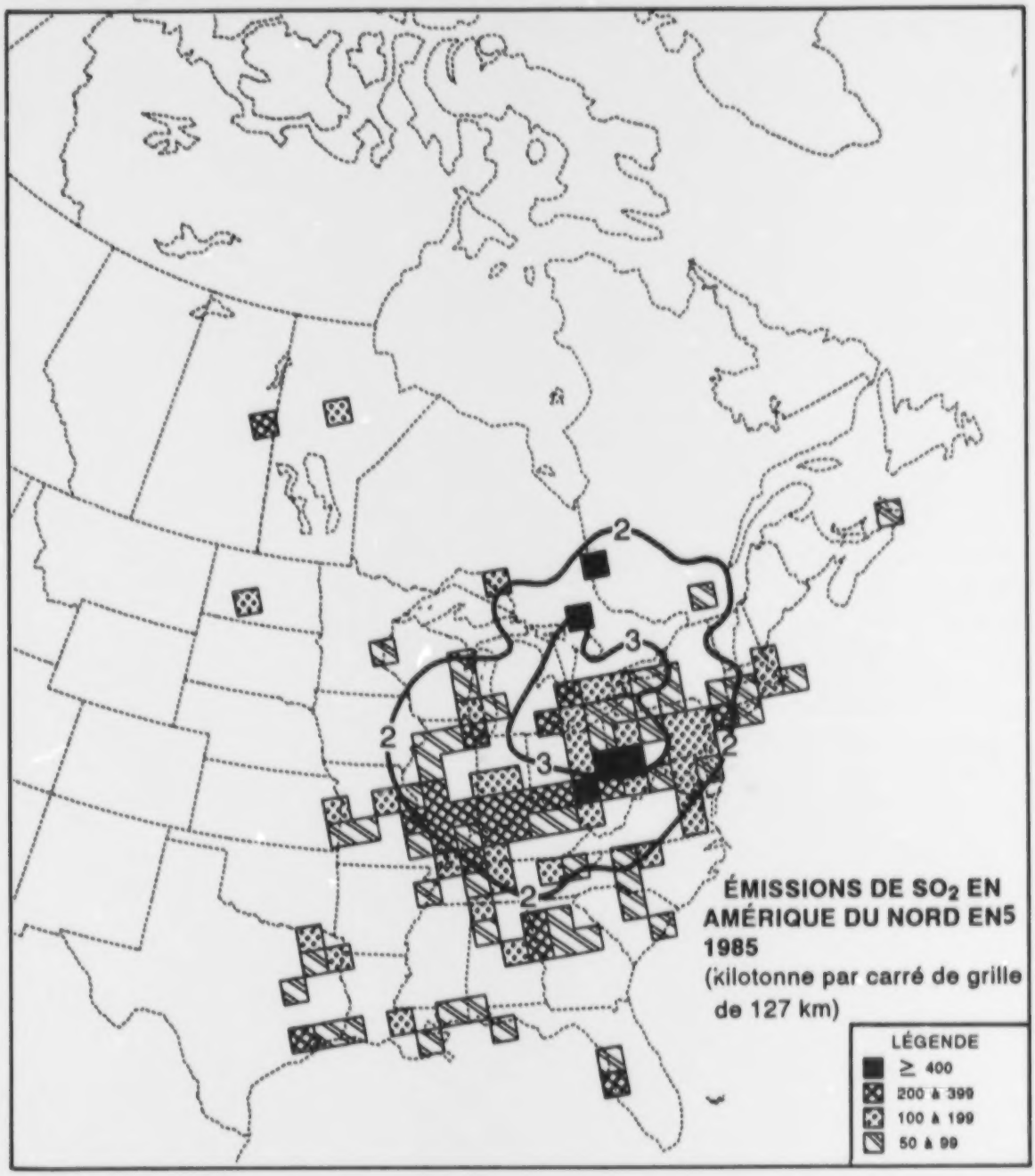


Figure 3.2.17 Superposition des isoplèthes des concentrations moyennes calculées sur six ans (1982 à 1987) des sulfates en excès (2 et 3 mg/l) sur la configuration des émissions de SO_2 de 1985.

NO_3^-

Les distributions spatiales des moyennes calculées sur 6 ans pour les dépôts et les concentrations de NO_3^- (figure 3.2.18) sont semblables à celles du $SO_4^=$ excédentaire. Les régions pour lesquelles les concentrations et les dépôts sont les plus élevés (maximum de 2,8 mg/l et de 27 kg/ha/année respectivement) sont situées dans le sud de l'Ontario et du Québec et dans certaines zones de l'Ohio, de la Pennsylvanie et de l'État de New York. Les concentrations et les dépôts les plus faibles (environ 0,3 mg/l et 2,45 kg/ha/année respectivement) ont été observés dans le nord-ouest de l'Ontario et au Manitoba.

Un rapport entre les émissions de NO_x et les concentrations de NO_3^- dans les précipitations et les dépôts humides se dégage également des distributions spatiales. La figure 3.2.19 montre les isoplèthes des concentrations de 1,5 et 2,0 mg/l superposées à la répartition des émissions de NO_x en 1985. Il est visible que la plupart des sources majeures d'émissions de NO_x (c.-à-d. des sources de plus de 200 kT/carré de grille) de la partie nord-est de l'Amérique du Nord sont incluses à l'intérieur de la région circonscrite par l'isoplèthe des concentrations de NO_3^- de 1,5 mg/l. De même, de vastes régions de l'Ontario et du Québec caractérisées par de faibles émissions de NO_x ont de très fortes concentrations de NO_3^- dans leurs précipitations et présente des dépôts humides de NO_3^- relativement importants. Comme dans le cas du $SO_4^=$, cette situation semble indiquer fortement que le transport sur de grandes distances à partir de régions à émissions élevées de l'Amérique du Nord a une grande influence sur la chimie des précipitations de l'Ontario et du Québec. Ici encore, l'hypothèse est corroborée par l'analyse des trajectoires des particules d'air apparaissant à la figure 3.2.20 du MDI (1982).

H^+ (et pH)

Il est frappant d'observer combien les distributions spatiales des concentrations et des dépôts de H^+ (figure 3.2.21) sont similaires à celles du NO_3^- et du $SO_4^=$ excédentaire; ceci réflète la forte influence du $SO_4^=$ et du NO_3^- sur l'acidité des précipitations. De 1982 à 1987, la région où l'on a observé les concentrations et les dépôts maximaux est celle qui avoisinait les basses terres des Grands Lacs; les régions où l'on a enregistré les concentrations et les dépôts minimaux sont celles qui sont plutôt isolées (le nord et l'ouest du Canada, et l'ouest des États-Unis). Les faibles concentrations de H^+ dans l'Ouest sont vraisemblablement reliées à l'influence neutralisante de la poussière du sol.

Changements dans les distributions spatiales avec le temps

L'étroite association géographique des distributions spatiales du $SO_4^=$ et du NO_3^- dans les précipitations avec les émissions de SO_2 et de NO_x a été signalée précédemment aux figures 3.2.17 et 3.2.19. Cette association semble indiquer que, comme les émissions de SO_2 ont affiché une tendance à la baisse prononcée et passablement régulière de 1980

à 1987 (voir le tableau 3.2.5), cette baisse devrait se refléter dans les changements survenus dans la distribution des concentrations de $SO_4^=$ dans les précipitations, pour la même période. Cependant, vu l'importante variabilité interannuelle de ces distributions que l'on peut constater à l'annexe B, la différence entre deux années données, n'importe lesquelles, peut être masquée par la variabilité des conditions météorologiques. On peut partiellement surmonter cette difficulté en établissant des moyennes sur 3 ans incluant l'année 1980 (1980 à 1982) et l'année 1985 (1985 à 1987) afin de couvrir grossièrement les années pour lesquelles des données sur les émissions sont disponibles. On peut voir à la figure 3.2.22 les variations de concentrations en $SO_4^=$ entre les deux périodes considérées (1980 à 1982 et 1985 à 1987). Ces variations sont exprimées sous forme de changement absolu et sous forme de changement relatif (en pourcentage) des concentrations par rapport à la période de référence 1980-1982. La région illustrée est celle pour laquelle une couverture spatiale raisonnable des stations de surveillance était disponible pour les deux périodes et pour laquelle il existait des données fiables. La distribution spatiale des variations relatives est légèrement différente decelle des variations absolues. Ceci est attribuable au fait que les concentrations moyennes pour la période de référence (1980-1982) ne sont pas uniformes spatialement.

Compte tenu de la précision des mesures et si l'on suppose qu'un changement de moins de ± 10 pour cent est non significatif, la figure 3.2.22 illustre que, pour la majeure partie de la région (sauf pour une zone peu étendue autour de la ville de Québec), les concentrations de $SO_4^=$ ont baissé d'une moyenne globale de 10 à 20 pour cent. Ces données sont tout à fait conformes aux variations d'émissions de SO_2 pour la partie est de l'Amérique du Nord, variations de -13,5 pour cent d'une période à l'autre. Même à une échelle régionale plus restreinte, les changements observés correspondent la plupart du temps à des variations d'émissions de SO_2 en amont. Par exemple, on peut voir à la figure 3.2.7 que les changements en pourcentage les plus importants dans les émissions de SO_2 entre 1980 et 1985 se sont produits dans une bande continue qui commence dans le Wisconsin, qui traverse les Grands Lacs et l'Ontario et qui se rend jusque dans l'État de New York, en Pennsylvanie et dans le nord de la Nouvelle-Angleterre. Outre les variations des concentrations observées dans le sud du Québec, les concentrations le long de cette bande diminuent entre 10 et 30 pour cent.

Immédiatement au sud des Grands Lacs, dans les États où les émissions sont élevées soient dans l'Illinois, l'Indiana, et l'Ohio et de la Virginie-Occidentale, le changement moyen en pourcentage dans les émissions s'établissait seulement à 5 ou 6 pour cent environ et les concentrations dans les précipitations ont changé de moins de 10 pour cent dans la région immédiatement à l'est et dans l'axe est/nord-est. Dans les États du sud des États-Unis, les rapports sont moins clairs, peut-être parce que la direction des vents responsables du transport des polluants est plus variable et que le changement des conditions météorologiques d'une année à l'autre jouent un rôle plus important que les émissions dans la détermination des variations interannuelles des concentrations.

La figure 3.2.23 reproduit les résultats d'une analyse semblable pour les concentrations de NO_3^- dans les précipitations. Globalement, les changements d'une période à l'autre sont beaucoup moins importants et, en fait, en termes de variations absolues des concentrations, si une classification selon les mêmes de teintes de gris devaient être employée à la figure 3.2.23a qu'à la figure 3.2.22a, la carte des variations de concentrations de NO_3^- apparaîtrait presque en blanc, à l'exception d'une région où les concentrations varient de plus de 0,4 mg/l. Pour la majeure partie de la région, le changement en pourcentage dans les concentrations de NO_3^- dans les précipitations est inférieur à 10 pour cent et, comme dans le cas du $SO_4^=$, ce changement s'accorde très bien avec la variation de -2,0 pour cent seulement dans les émissions de NO_x sur la partie est de l'Amérique du Nord, d'une période à l'autre (tableau 3.2.5). Compte tenu de la précision des mesures de concentrations de NO_3^- dans les précipitations et des estimations des émissions de NO_x, on peut conclure qu'il n'y a pas eu de changement dans les distributions spatiales de NO_3^-.

CONCENTRATION MOYENNE CALCULÉE SUR SIX ANS (1982-87) DE NO_3^- DANS LES PRÉCIPITATIONS (mg/l)

DÉPÔTS MOYENS CALCULÉS SUR SIX ANS (1982-87) DE NO_3^- (kg/ha/année)

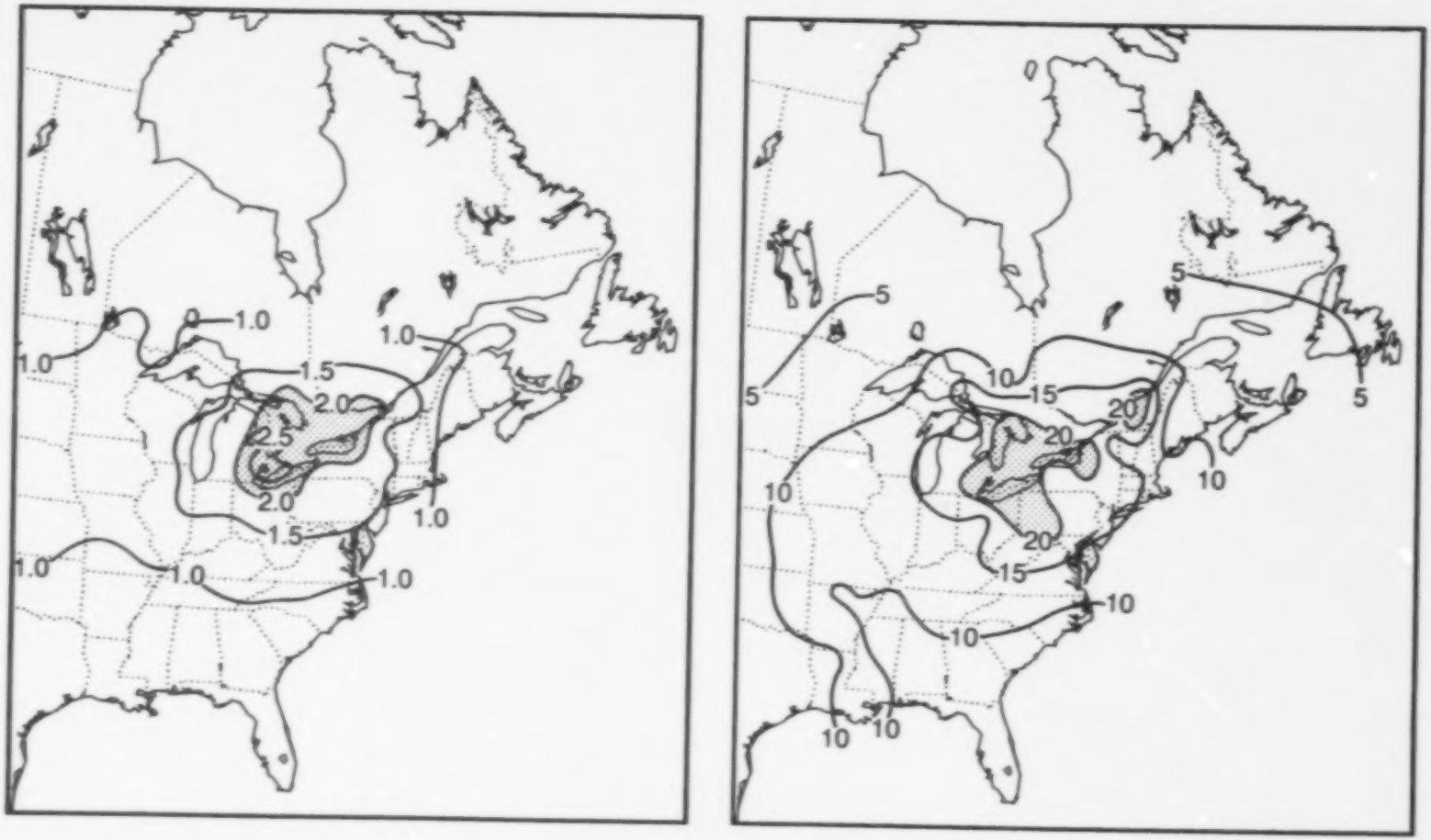


Figure 3.2.18 Configurations des concentrations et des dépôts moyens de nitrates calculés sur six ans (de 1982 à 1987).

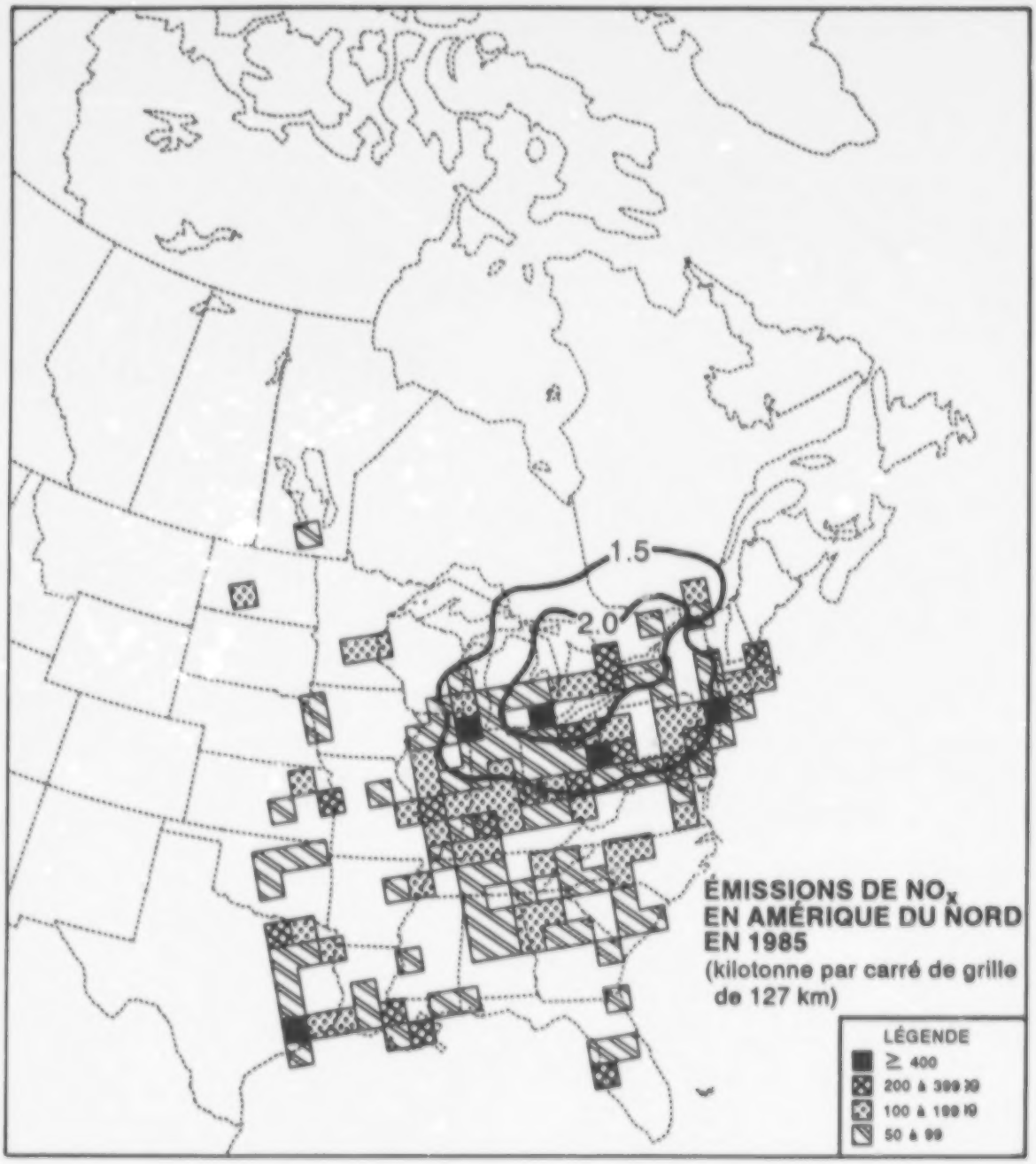
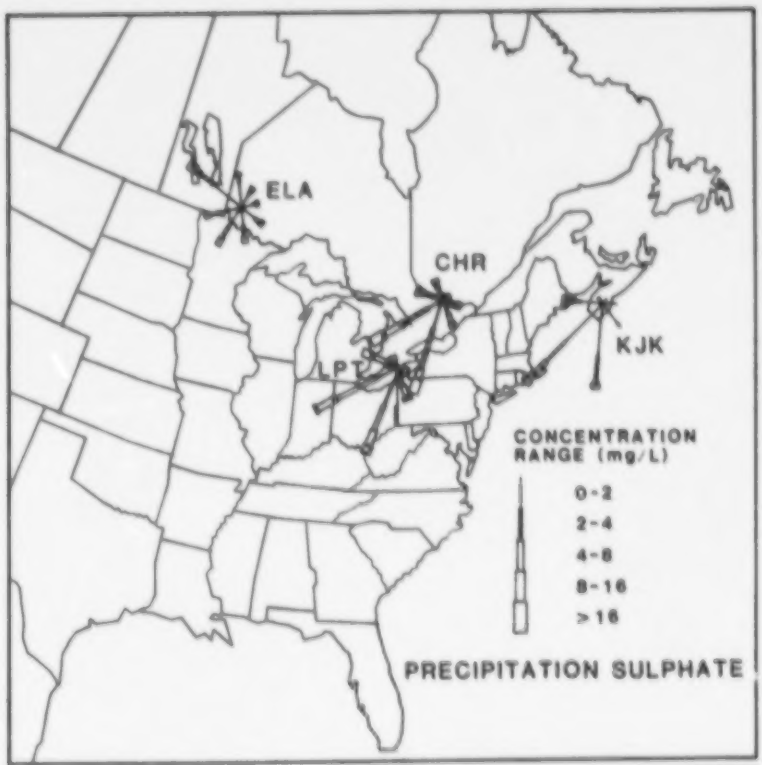
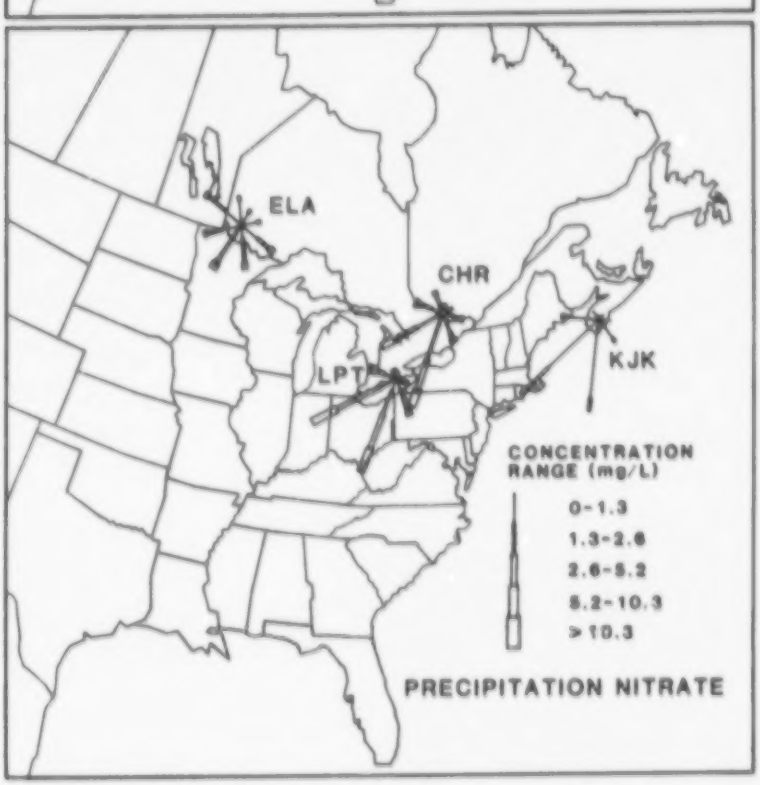


Figure 3.2.19 Superposition des isoplèthes des concentrations moyennes calculées sur six ans (1982 à 1987) des nitrates (1,5 et 3 mg/l) sur la configuration des émissions de NO_x de 1985.



a)



b)

Figure 3.2.20 Roses des trajectoires (rétrotrajectoires de deux jours à 925 mb) des concentrations de sulfates (en haut) et de nitrates (en bas) dans les précipitations mesurées à plusieurs emplacements canadiens (MDI, 1982).

CONCENTRATION MOYENNE CALCULÉE SUR SIX ANS (1982-87) DE H+ DANS LES PRÉCIPITATIONS (mg/l)

DÉPÔTS MOYENS CALCULÉS SUR SIX ANS (1982-87) DE H+ (kg/ha/année)

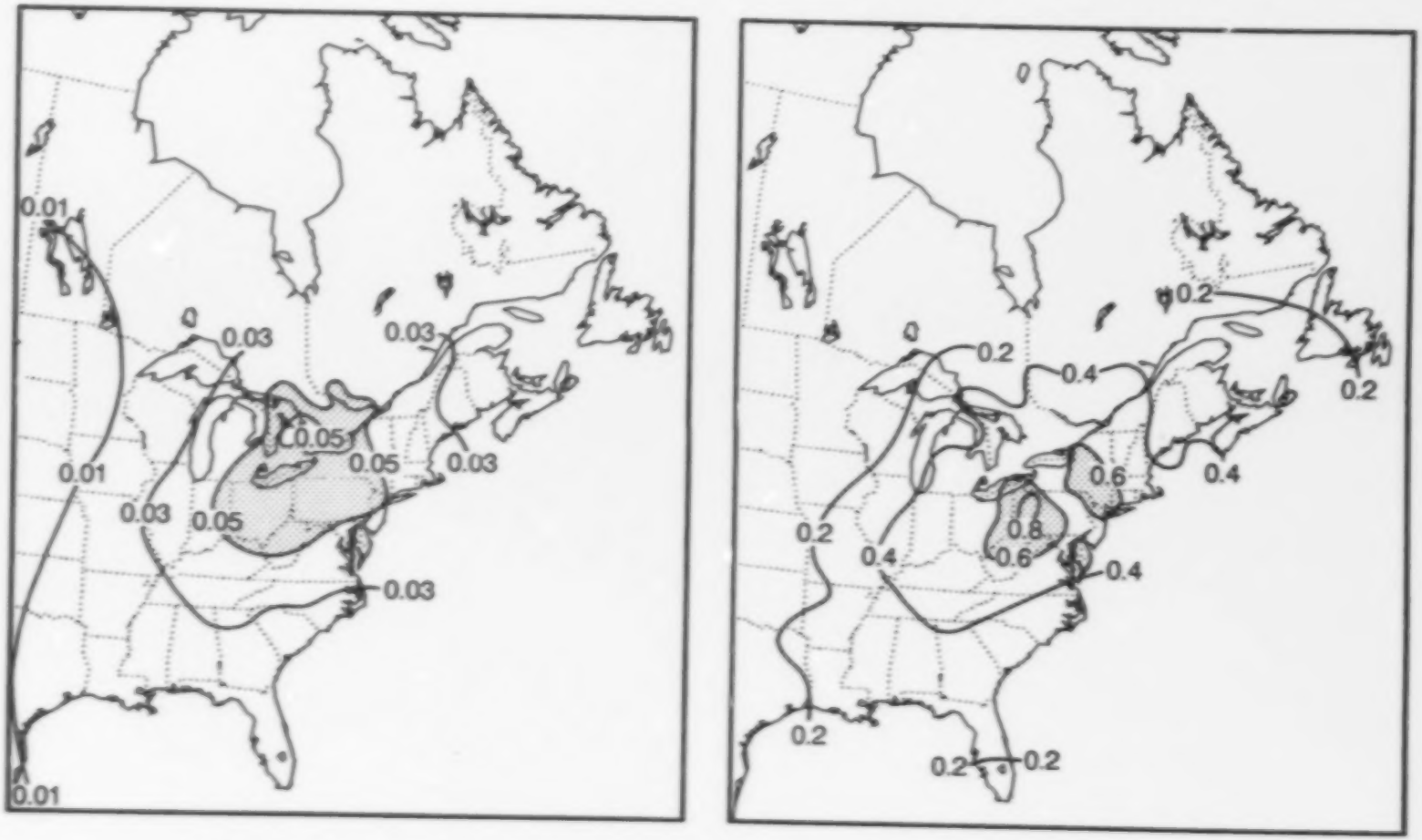


Figure 3.2.21 Configurations des concentrations et des dépôts moyens de H^+ calculés sur six ans (1982 à 1987).

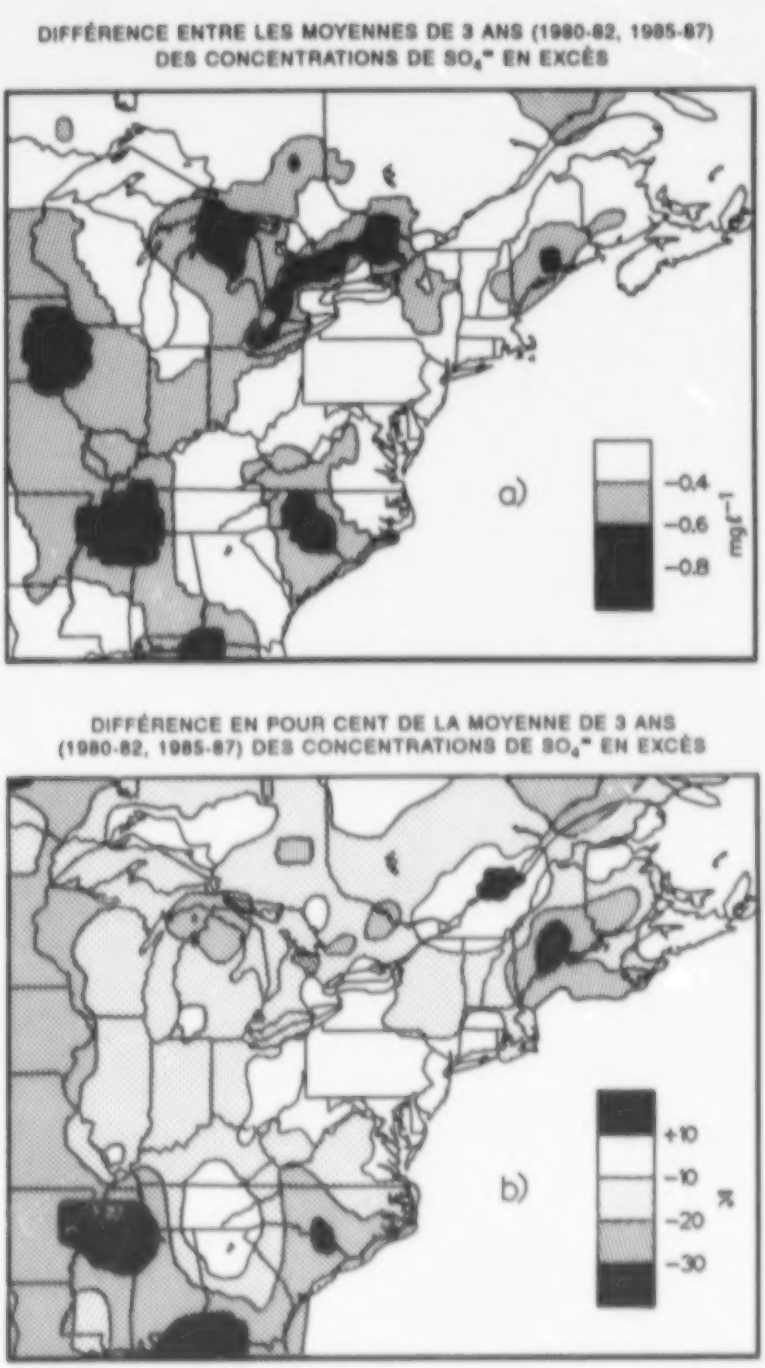
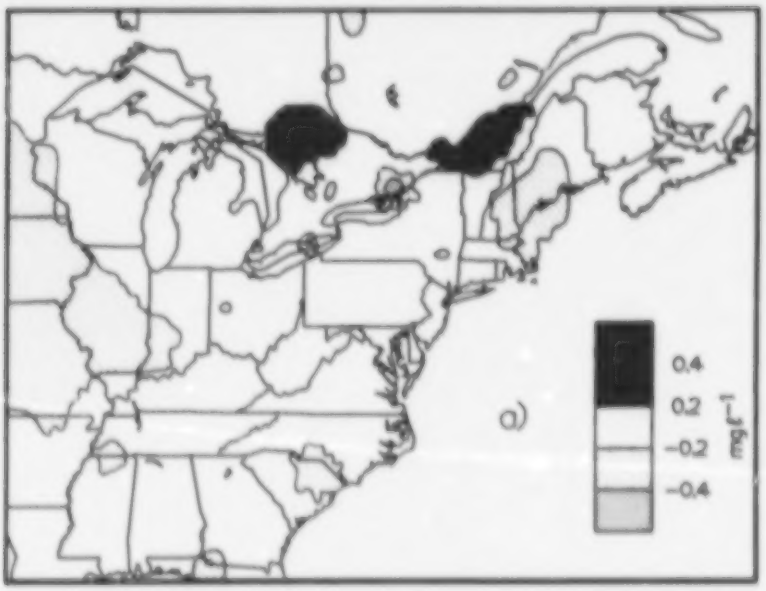


Figure 3.2.22 Changements dans les concentrations moyennes pondérées de $SO_4^=$ dans les précipitations entre la période de 1980 à 1982 et celle de 1985 à 1987; ces changements sont exprimés par la configuration spatiale a) des variations absolues en mg/l et b) des pourcentages de variation par rapport à la première période.

DIFFÉRENCE ENTRE LES MOYENNES DE 3 ANS (1980-82, 1985-87) DES CONCENTRATIONS DE NO_3^- EN EXCÈS



DIFFÉRENCE EN POUR CENT DE LA MOYENNE DE 3 ANS (1980-82, 1985-87) DES CONCENTRATIONS DE NO_3^- EN EXCÈS

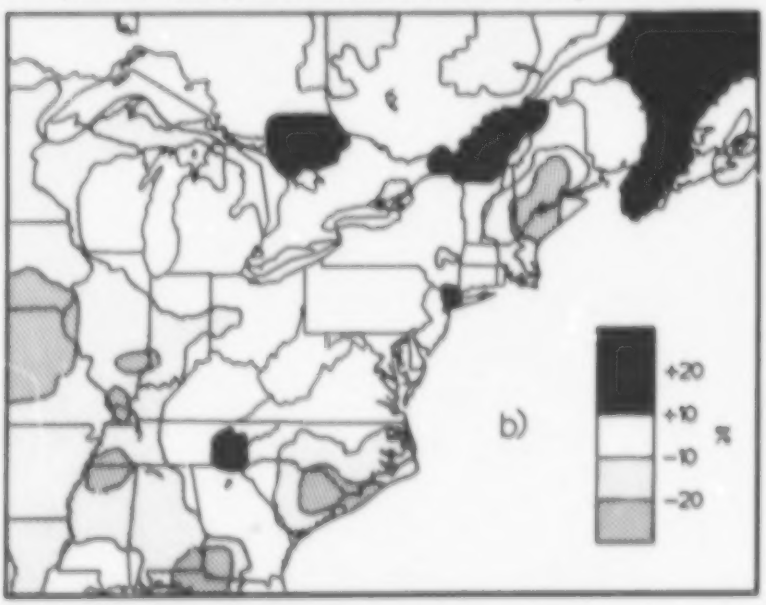


Figure 3.2.23 Changements dans les concentrations moyennes pondérées de NO_3^- dans les précipitations entre la période de 1980 à 1982 et celle de 1985 à 1987; ces changements sont exprimées par la configuration spatiale a) des variations absolues en mg/l et b) des pourcentages de variation par rapport à la première période.

3.2.2c DISTRIBUTIONS TEMPORELLES ET SPATIALES DES CONCENTRATIONS D'ANHYDRIDE SULFUREUX, DE SULFATE ET DE NITRATE DANS L'AIR, EN ONTARIO

On a procédé à une analyse détaillée des distributions spatiales des concentrations d'anhydride sulfureux, de sulfate et de nitrate dans l'air en Ontario, concentrations qui ont été mesurées par le réseau de l'EPAO (Étude des précipitations acides en Ontario) lors des années 1982 à 1986 (annexe 3C.).

Les distributions moyennes de ces éléments pour les années 1982 à1986 apparaissent à la figure 3.2.24. Ces distributions montrent une forte diminution de la concentration atmosphérique de tous les éléments dans l'ensemble de l'Ontario. La situation est celle à laquelle on pouvait s'attendre en raison de la direction des vents dominants et de l'emplacement des sources d'émission dans l'est de l'Amérique du Nord.

Les isolignes du SO_2 et, dans une moindre mesure, celles du $SO_4^=$ se sont déplacées vers le sud, au cours de la période visée par l'étude, ce qui correspond à une diminution des concentrations à la plupart des sites de mesure au cours de cette période. Par contre, les concentrations de NO_3^- total ne montrent pas le même comportement. Cette situation est illustrée par la comparaison de la distribution spatiale moyenne de chacun de ces éléments pour une période de deux ans, au commencement et à la fin de la période considérée (figures 3.2.24 à 3.2.27).

Les données disponibles sur les concentrations atmosphériques s'accordent avec les concentrations dans les précipitations décrites à la section précédente.

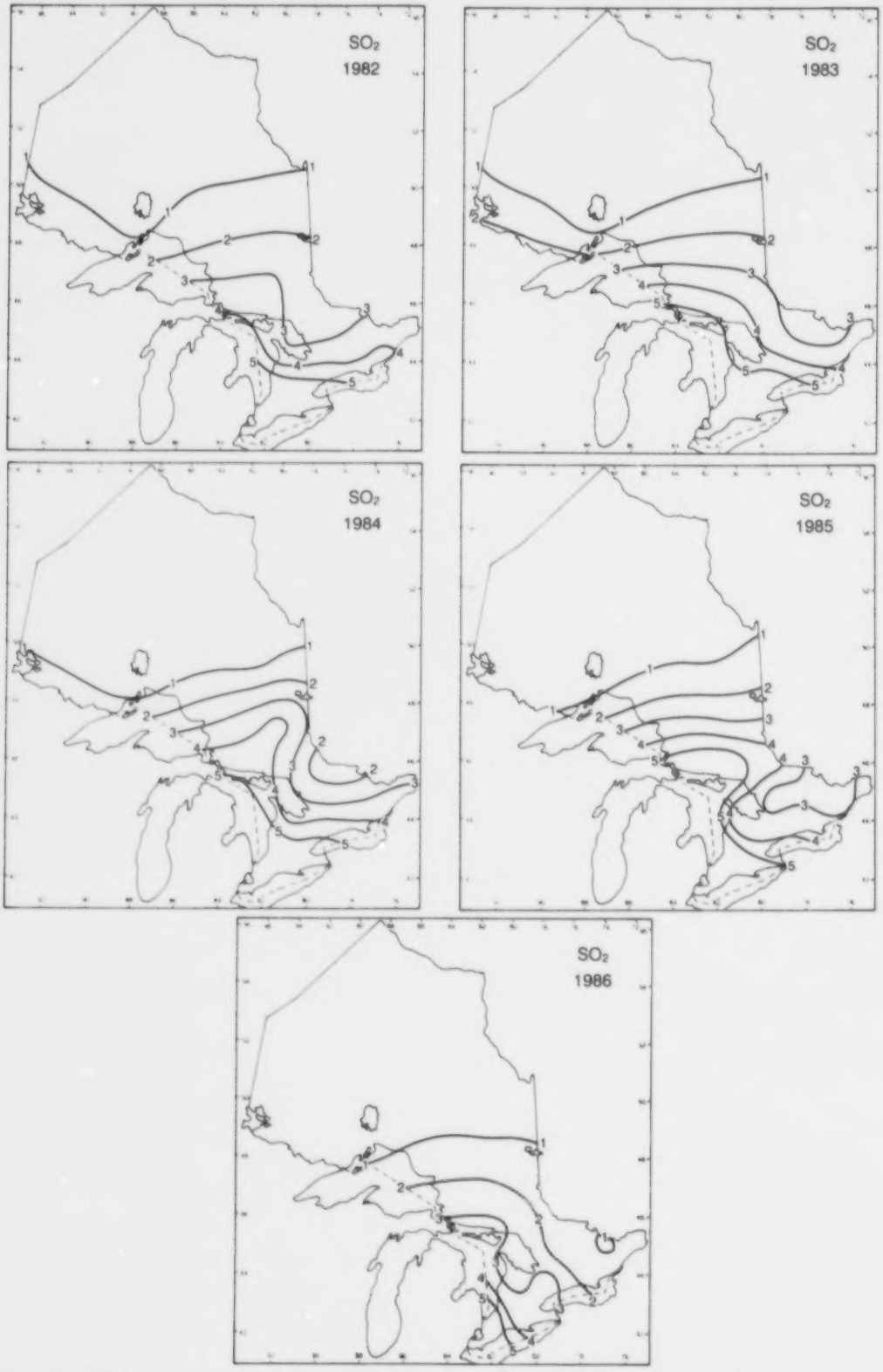


Figure 3.2.24a Moyenne annuelle calculée sur 28 jours des concentrations atmosphériques de SO_2 ($\mu g\ m^{-3}$) en Ontario: 1982 à 1986.

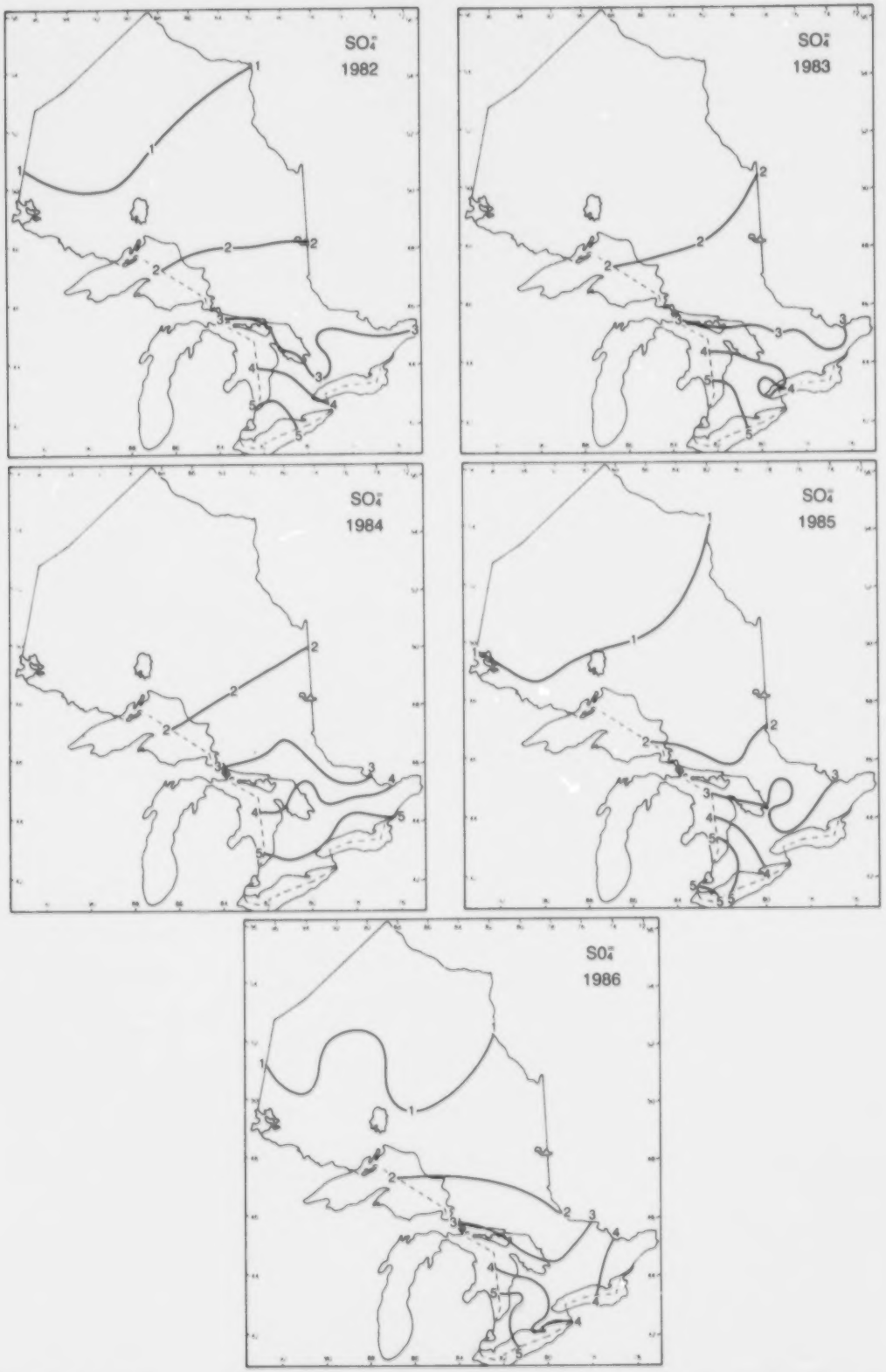


Figure 3.2.24b Moyenne annuelle calculée sur 28 jours des concentrations atmosphériques de $SO_4^=$ ($\mu g\ m^{-3}$) en Ontario: 1982 à 1986.

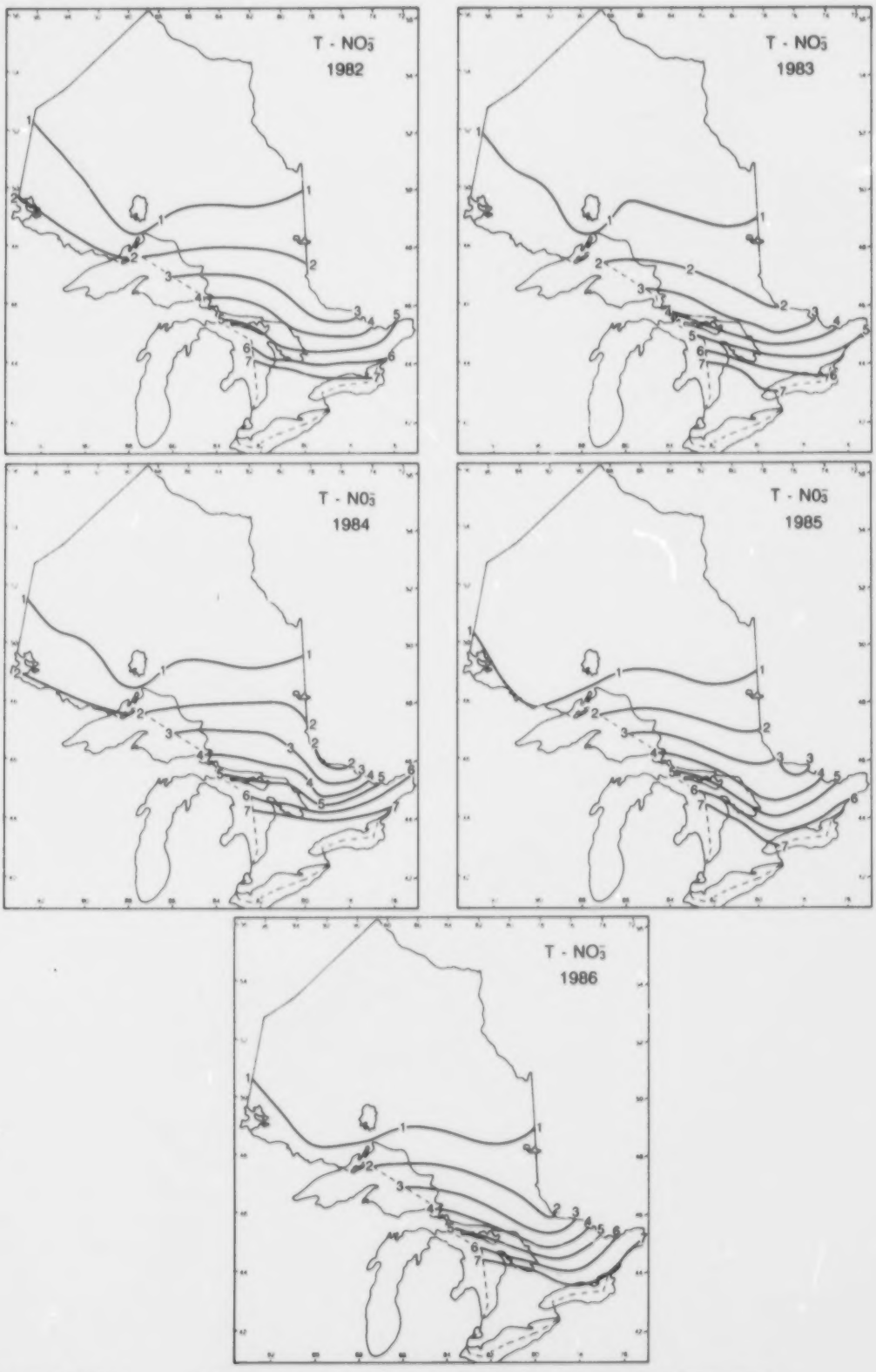


Figure 3.2.24c Moyenne calculée sur 28 jours des concentrations atmosphériques de tous les NO_3^- (μg d'azote m^{-3}) en Ontario: 1982 à 1986.

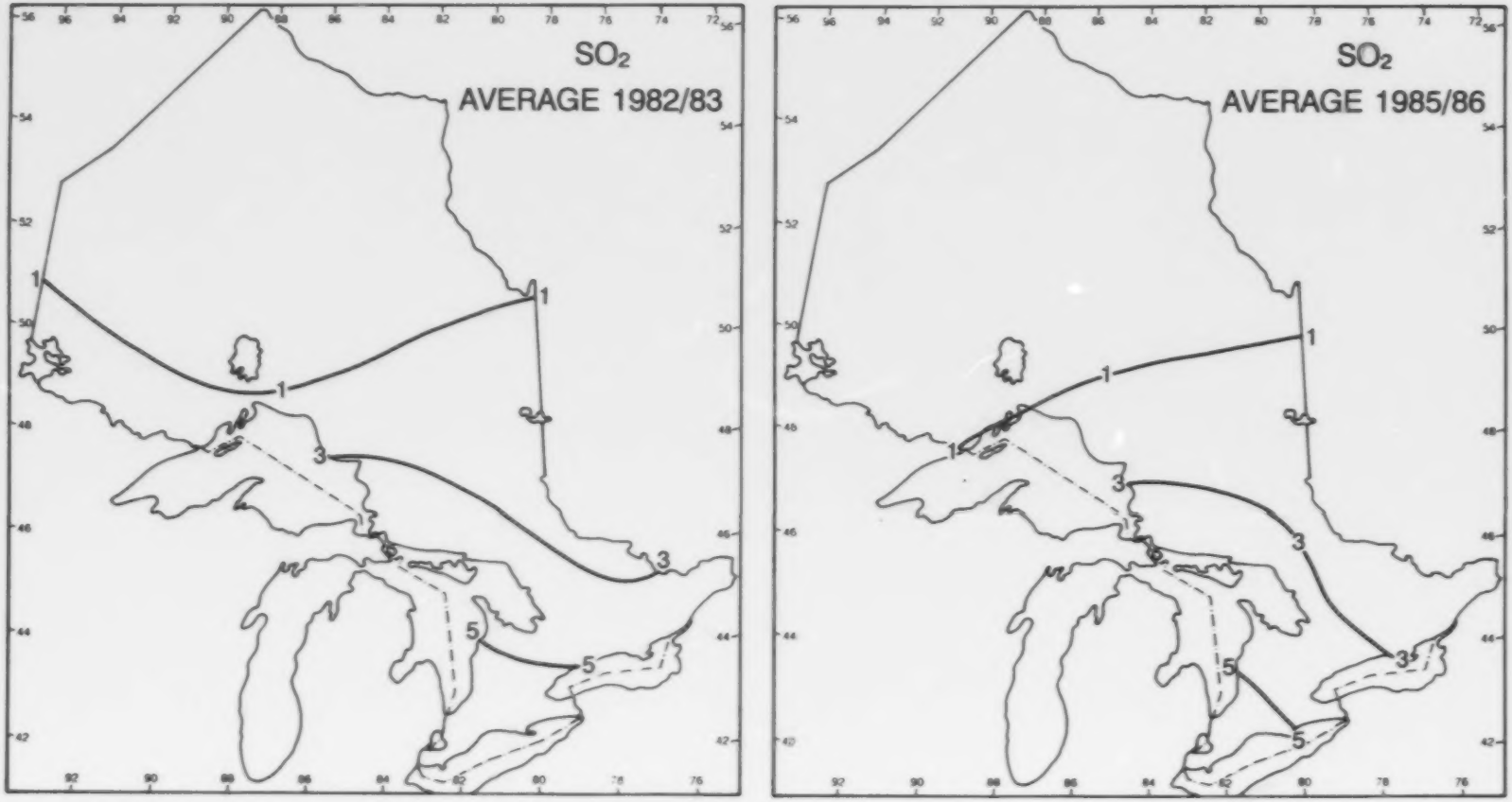


Figure 3.2.25 Variation des concentrations atmosphériques d'anhydride sulfureux ($\mu g\ m^{-3}$) en Ontario : comparaison entre 1982-1983 et 1985-1986.

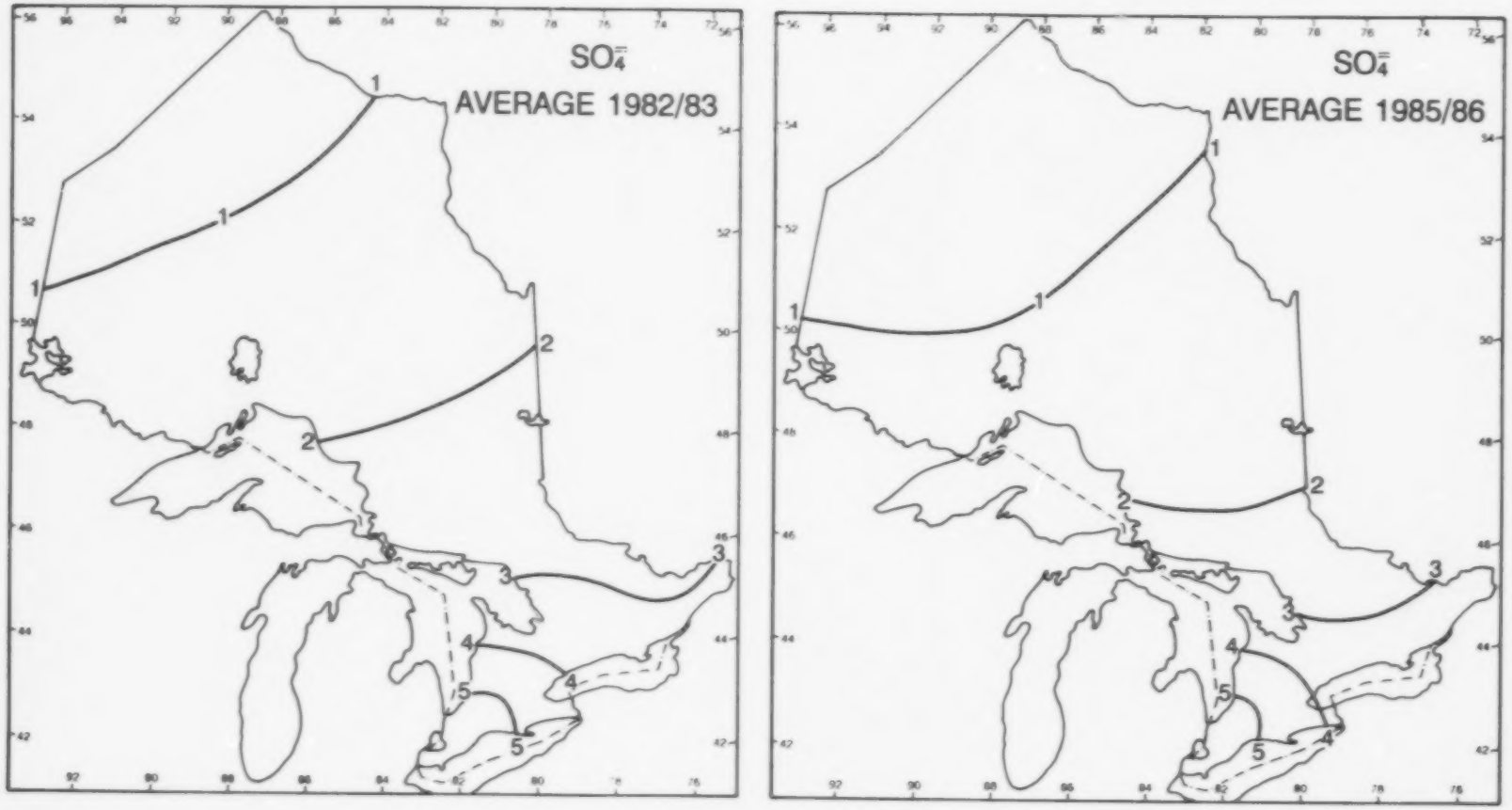


Figure 3.2.26 Variation des concentrations atmosphériques des sulfates ($\mu g\ m^{-3}$) en Ontario : comparaison entre 1982-1983 et 1985-1986.

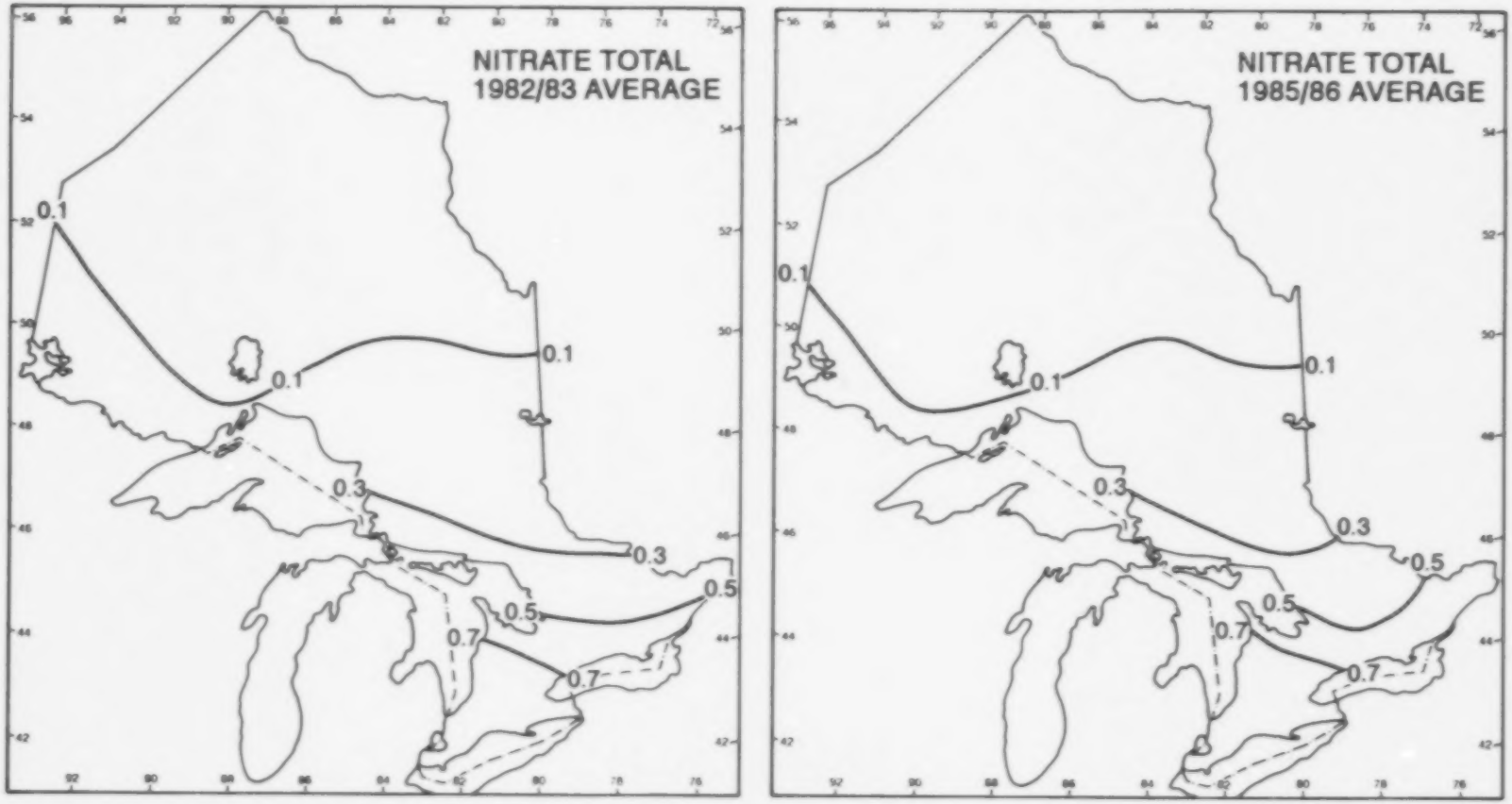


Figure 3.2.27 Variation de la concentration de tous les nitrates dans l'air ($\mu g\ N\ m^{-3}$) en Ontario : comparaison entre 1982-1983 et 1985-1986.

3.2.3 TENDANCES DES ÉLÉMENTS ACIDES OBSERVÉS DANS L'EST DU CANADA

Il existe plusieurs études sur les tendances des mesures ponctuelles de $SO_4^{=}$ et de NO_3^- dans l'air et les précipitations de l'est du Canada, qui, comparées aux tendances des émissions, peuvent éclairer le rapport entre les sources émettrices et l'acidité des précipitations et de l'air des zones réceptrices.

3.2.3a VARIATIONS TEMPORELLES DU SULFATE ET DU NITRATE DANS L'AIR ET LES PRÉCIPITATIONS DE CINQ STATIONS D'OBSERVATIONS FÉDÉRALES, DANS L'EST DU CANADA

Depuis 1979, le gouvernement fédéral a procédé à des mesures quotidiennes de la chimie des précipitations et de l'air à certains endroits en milieu rural, au Canada, et en particulier dans l'Est, là où le problème des pluies acides est le plus aigu. L'annexe D présente une analyse détaillée des séries chronologiques de 1979 à 1987, pour les concentrations hebdomadaires (moyenne pondérée en fonction de la hauteur des précipitations) des éléments acides dans les précipitations et pour les concentrations médianes mensuelles des éléments acides dans l'air à cinq endroits (figure 3.2.28) à l'exception de Dorset. Le modèle statistique employé sépare la série chronologique en ses trois composantes: i) la composante saisonnière; ii) le cycle à long terme d'une durée supérieure à un an mais inférieure à la période couverte par les données enregistrées et iii) la tendance à long terme. Pour les précipitations, un terme supplémentaire a été ajouté au modèle pour tenir compte de l'effet, sur les concentration, de la hauteur des précipitations.

Les résultats de l'analyse sont résumés aux tableaux 3.2.7 et 3.2.8. A partir du rapport source-récepteur entre les émissions et la qualité de l'air d'une zone réceptrice en aval, on comprend que la tendance définie par la somme des deuxième et troisième composantes de la série chronologique (cycle et tendance à long terme) est le principal élément d'information. On en établit la courbe pour les précipitations et l'air respectivement aux figures 3.2.29a, b et 3.2.30a, b, c pour les endroits où ces composantes sont significatives. On a procédé à une normalisation des courbes par rapport à la concentration moyenne de 1980 ou par rapport à la première année ultérieure complète pour laquelle des données ont été enregistrées. Dans le cas des précipitations, les courbes représentent des variations normalisées corrigées en fonction d'une dépendance inverse des concentrations par rapport à la hauteur des précipitations.

Pour le $SO_4^{=}$ et le NO_3^- des précipitations, à l'exception du NO_3^- de Chalk River, on a observé une importante variation non saisonnière à toutes les stations. Cependant, pour le NO_3^- (figure 3.2.29b), la majeure partie de cette variation se rapportait à la deuxième composante de la série chronologique (cycle à long terme). On n'a pu déceler d'augmentation ni de diminution régulière sauf à Kejimkujik où une augmentation s'est produite entre 1979 et 1987.

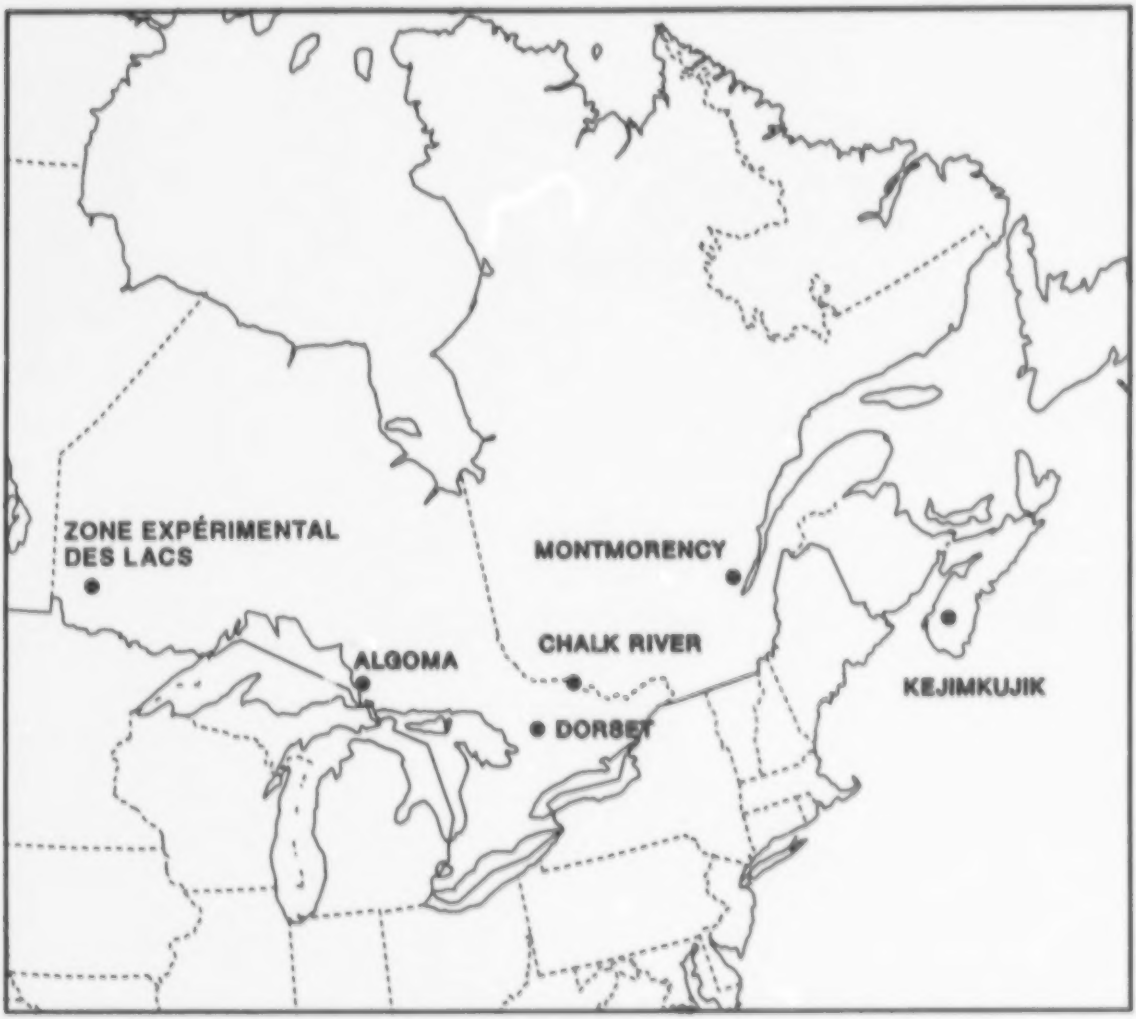


Figure 3.2.28 Carte montrant les emplacements de surveillance à long terme de l'atmosphère et des précipitations.

Tableau 3.2.7

Résumé des résultats d'analyses des séries chronologiques des concentrations de $SO_4^{=}$ et de NO_3^{-} dans les précipitations à 5 endroits en milieu rural, dans l'est du Canada.

N est le nombre de données utilisées et R^2 est la fraction de la variance totale expliquée par le modèle. "O" signifie que la composante du modèle est significative et "N", qu'elle n'est pas.

ION	STATION	N	R^2	HAUTEUR DES PRÉCIPITATIONS	TENDANCE À LONG TERME	CYCLE À LONG TERME	CYCLE ANNUEL
$SO_4^{=}$	E.L.A.	318	.34	O	O	O	O
	ALGOMA	302	.19	O	O	O	O
	CHALK RIVER	363	.34	O	O	N	O
	MONTMORENCY	257	.27	O	O	N	O
	KEJIMKUJIK	364	.31	O	O	N	O
NO_3^{-}	E.L.A.	269	.19	O	N	O	O
	ALGOMA	291	.15	N	N	O	O
	CHALK RIVER	325	.17	O	N	N	O
	MONTMORENCY	248	.06	O	N	O	O
	KEJIMKUJIK	347	.20	O	O	N	O

Tableau 3.2.8

Résumé des résultats d'analyses des séries chronologiques des concentrations de $SO_4^=$, de SO_2 et de NO_3^- total dans l'air à 5 endroits en milieu rural, dans l'est du Canada.

N est le nombre de données utilisées et R^2 est la fraction de la variance totale expliquée par le modèle. "O" signifie que la composante du modèle est significative et "N", qu'elle n'est pas.

ION	STATION	N	R^2	TENDANCE À LONG TERM	CYCLE À LONG TERM	CYCLE ANNUEL
$SO_2^=$	E.L.A.	103	.52	N	O	O
	ALGOMA	84	.17	N	N	O
	CHALK RIVER	105	.27	O	O	N
	MONTMORENCY	80	.35	N	O	O
	KEJIMKUJIK	98	.35	N	O	O
SO_2	E.L.A.	79	.71	O	O	O
	ALGOMA	79	.71	N	O	O
	CHALK RIVER	104	.80	O	N	O
	MONTMORENCY	65	.77	O	N	O
	KEJIMKUJIK	83	.78	O	O	O
TNO_3^-	E.L.A.	102	.37	N	O	O
	ALGOMA	83	.12	N	N	O
	CHALK RIVER	103	.40	O	O	O
	MONTMORENCY	76	.19	O	N	O
	KEJIMKUJIK	98	.24	O	N	O

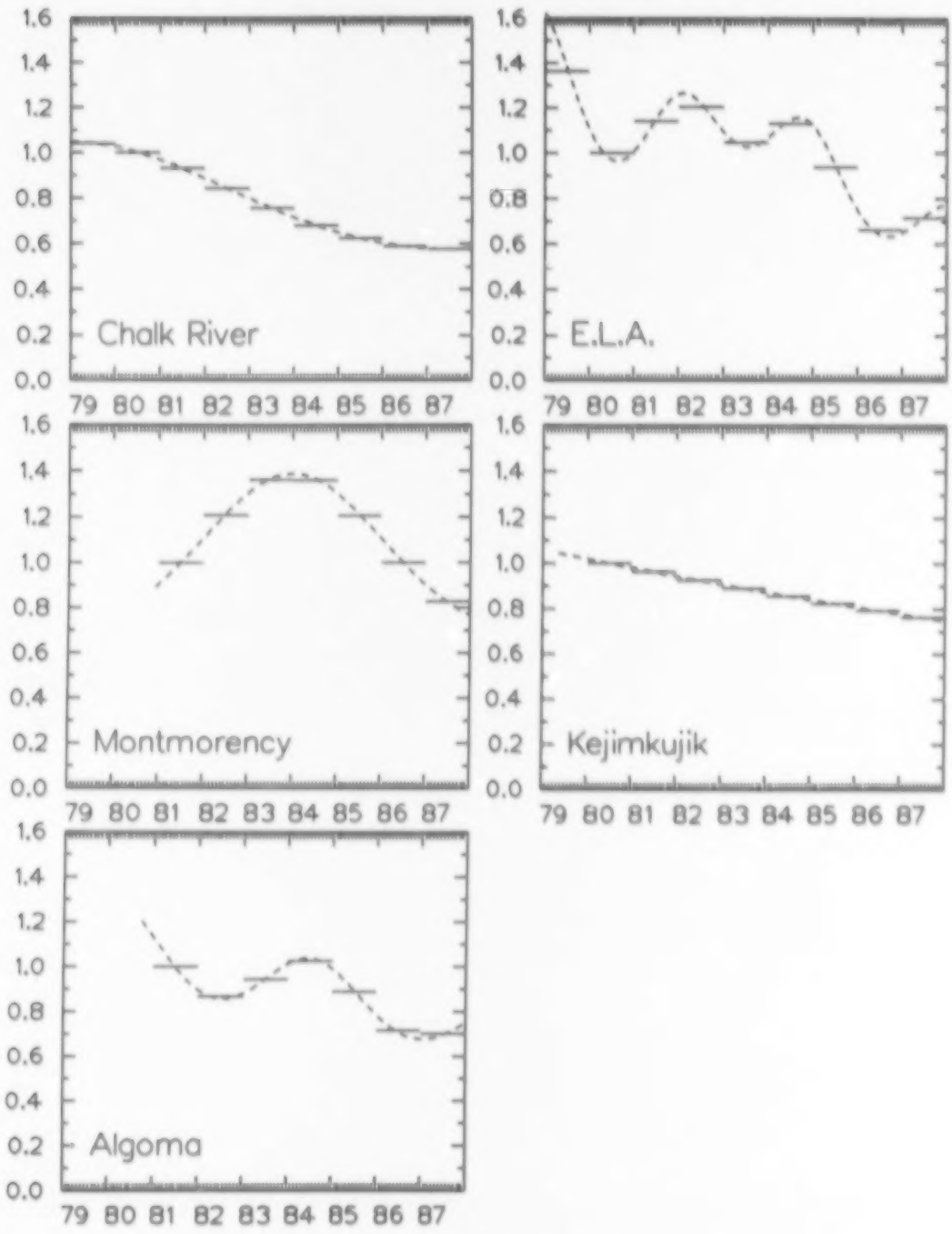


Figure 3.2.29a Tendances normalisées des concentrations de $SO_4^=$ dans les précipitations (corrigées de l'influence de la hauteur des précipitations et excluant les cycles saisonniers).

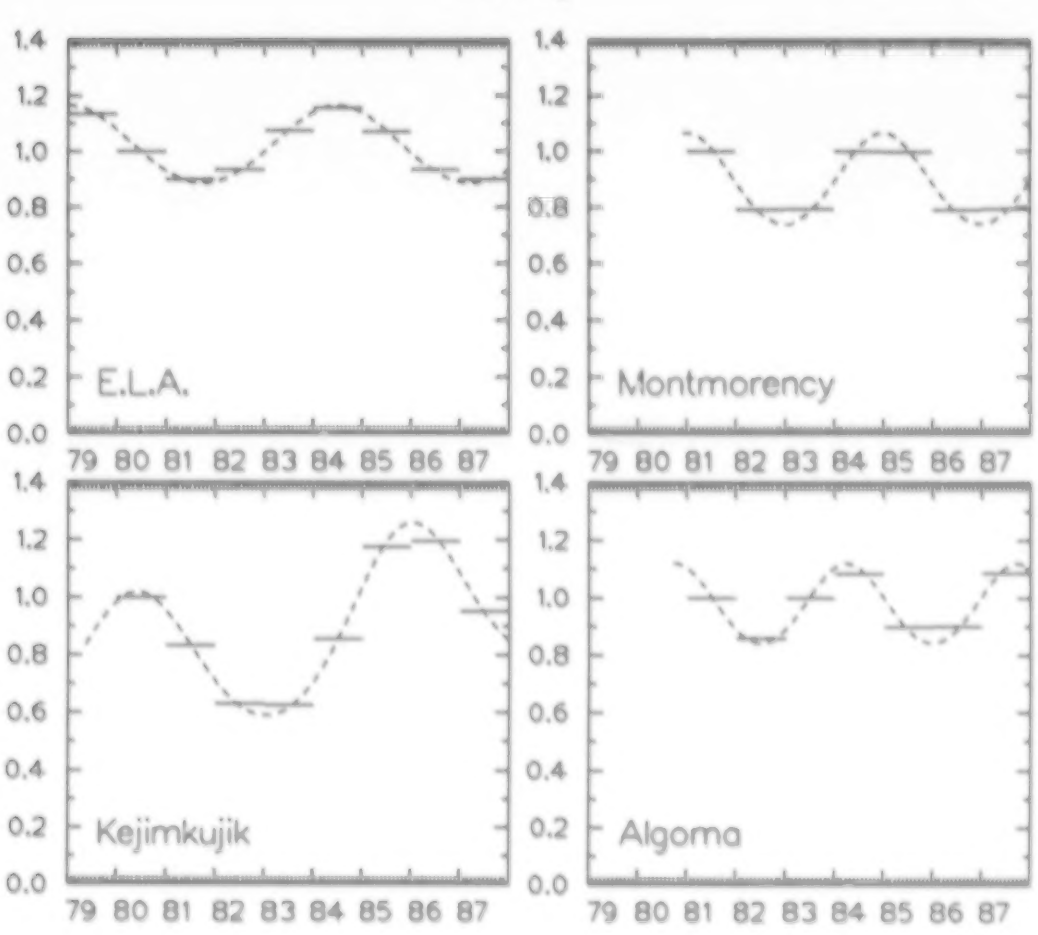


Figure 3.2.29b Tendances normalisées des concentrations de NO_3^- dans les précipitations (corrigées de l'influence de la hauteur des précipitations et excluant les cycles saisonniers).

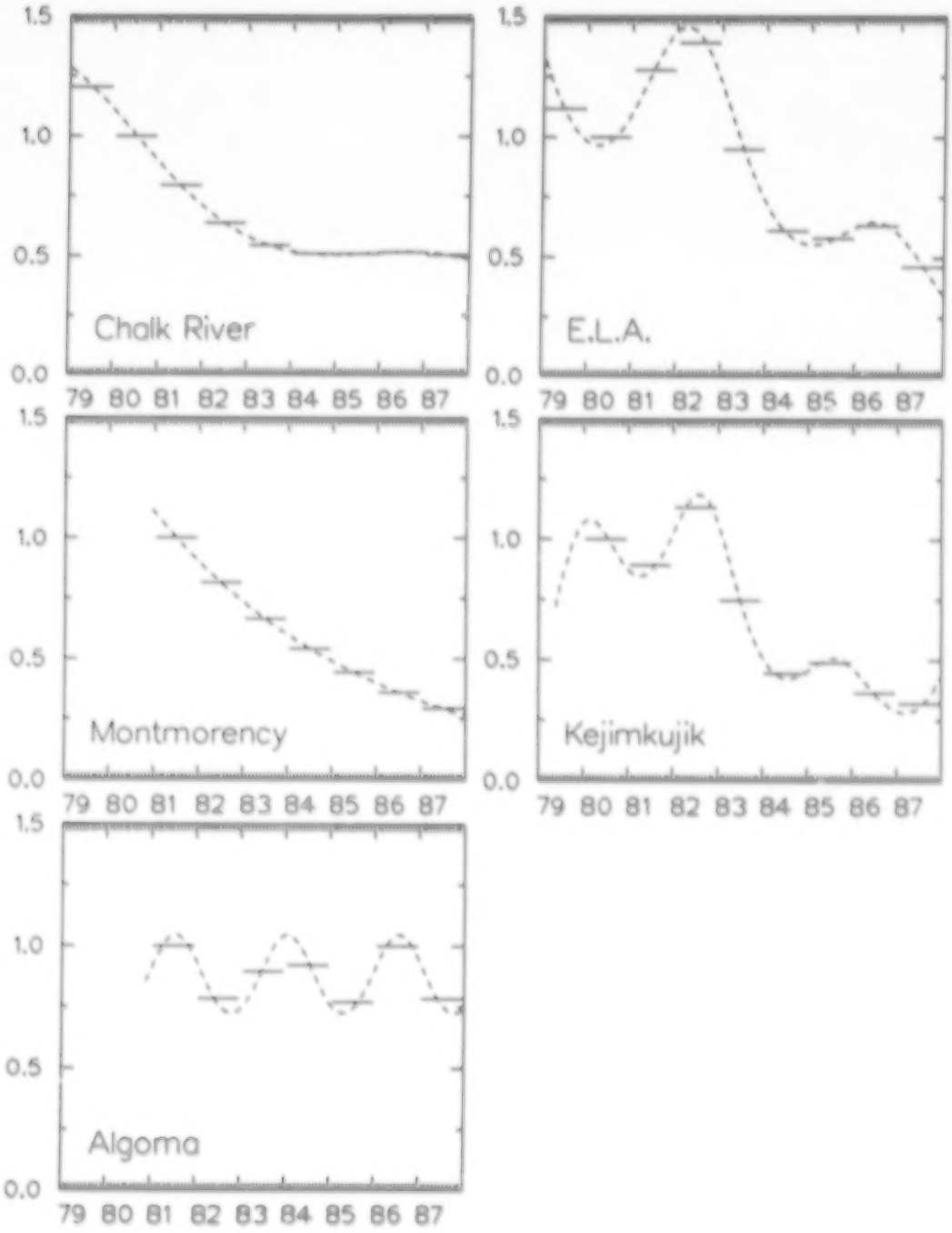


Figure 3.2.30a Variations normalisées des concentrations de SO_2 dans l'air (excluant les cycles saisonniers).

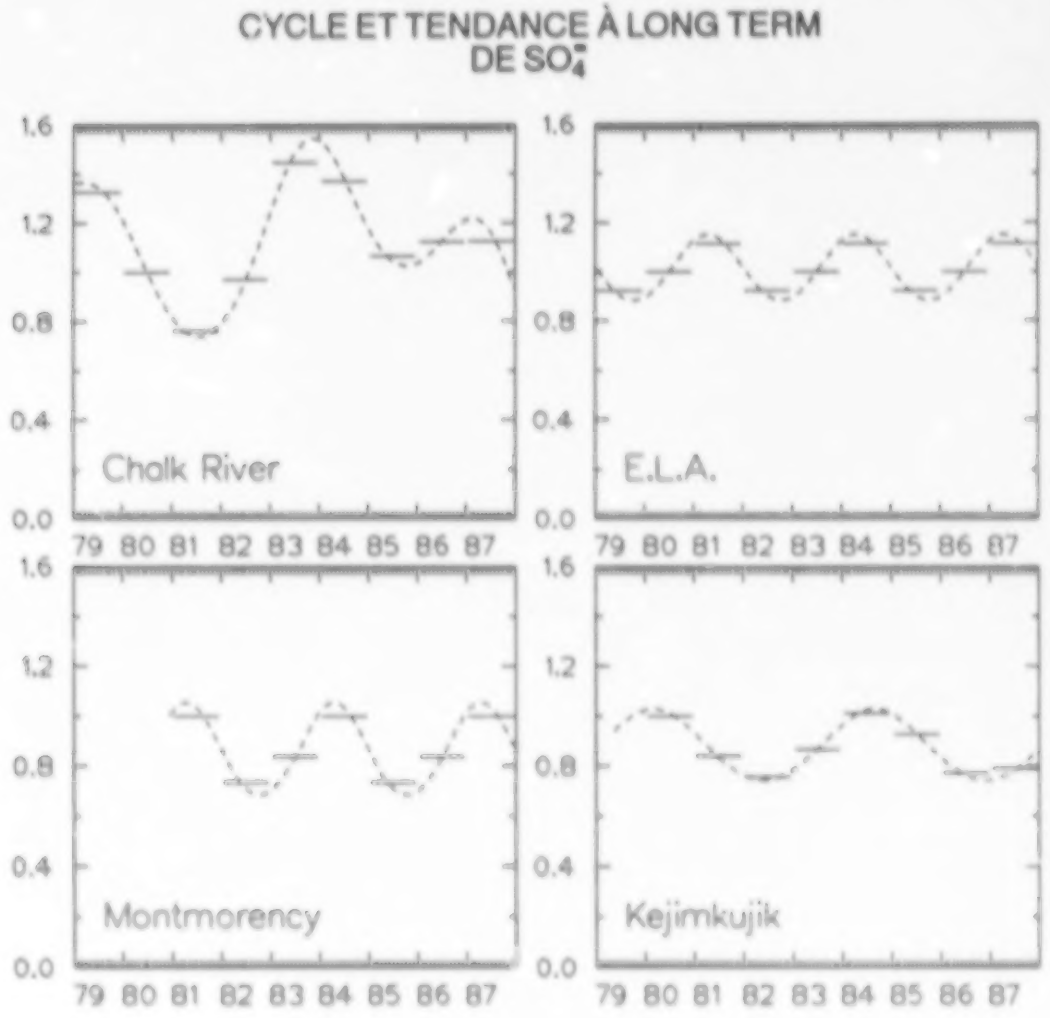


Figure 3.2.30b Variations normalisées des concentrations de $SO_4^=$ dans l'air (excluant les cycles saisonniers).

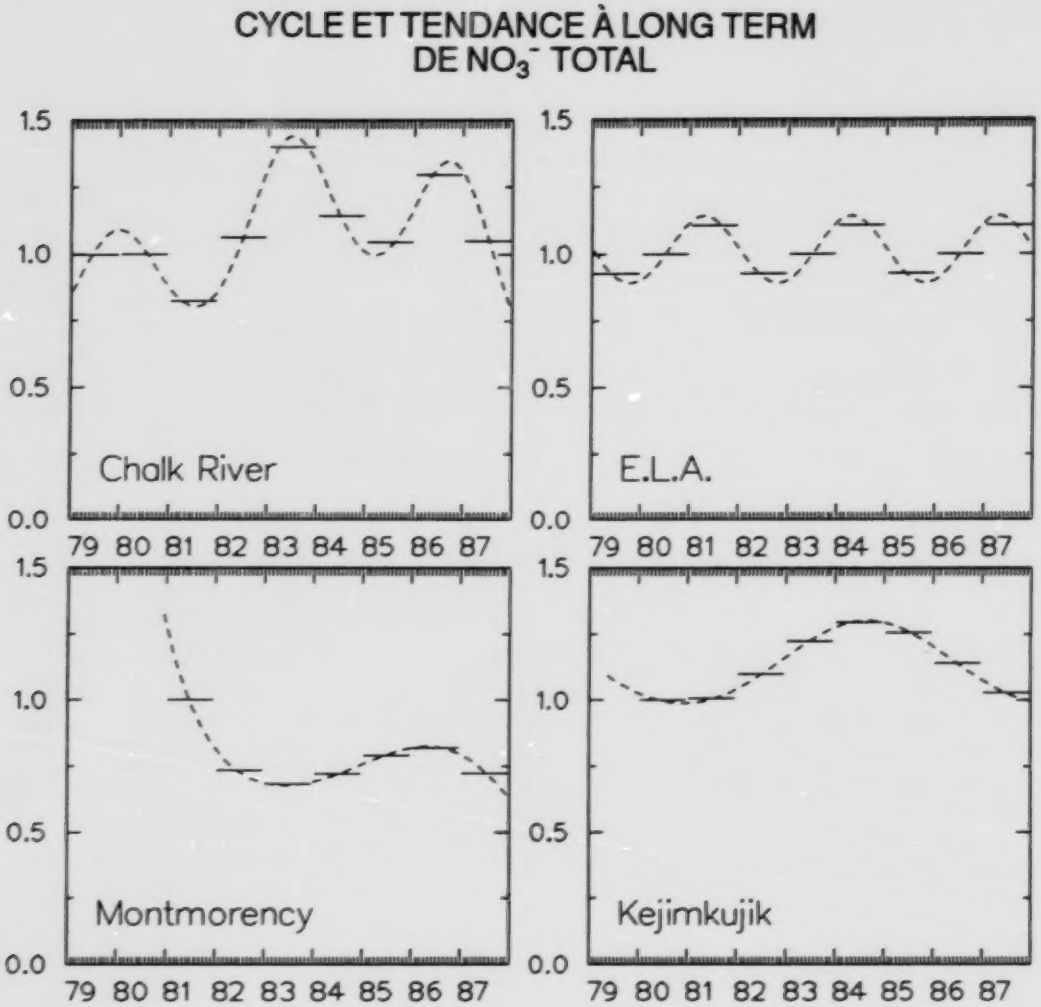


Figure 3.2.30c Variations normalisées des concentrations de NO_3^- dans l'air (excluant les cycles saisonniers).

Quant au $SO_4^=$ des précipitations (figure 3.2.29a), une tendance à long terme était évidente entre 1981 et 1987 à toutes les stations. Les concentrations de $SO_4^=$ ont baissé à toutes les stations, sauf à Montmorency. A cet endroit, les concentrations de $SO_4^=$ ont atteint un sommet aux environs de 1984. La diminution enregistrée à Kejimkujik concorde avec la diminution observée dans la région canadienne des Maritimes (figure 3.2.22). Les changements survenus à Kejimkujik sont caractéristiques de ceux qui se produisent dans le reste de la Nouvelle-Écosse, comme l'indique la concordance avec les observations faites par le réseau provincial de la Nouvelle-Écosse (annexe 3E).

Dans l'air, des tendances marquées à long terme (pas nécessairement des tendances régulières à la baisse) ont été décelées pour le $SO_4^=$ seulement à Chalk River (figure 3.2.30b); pour le NO_3^- total, à Chalk River, à Montmorency et à Kejimkujik (fig 3.2.30c) et, pour le SO_2, à toutes les stations sauf à Algoma (figure 3.2.30a).

La méthode de l'analyse des tendances stratifiées par secteur (SSTA) pour les données atmosphériques a été appliquée à deux endroits : à E.L.A. (*Experimental Lake Area*), à la périphérie ouest des principales sources nord-américaines, et à Kejimkujik, à la périphérie est. La méthode comportait la même analyse que celle qui est décrite ci-dessus, mais en utilisant les médianes mensuelles des données quotidiennes stratifiés par un secteur d'origine, à partir de rétrotrajectoires des parcelles d'air. Pour le SO_2 seulement, des tendances à long terme statistiquement significatives ont été observées dans la E.L.A.. Entre janvier 1982 et décembre 1987, la composante à long terme du SO_2 a diminué d'un facteur 3 à 4 pour tous les secteurs.

A Kejimkujik, une analyse analogue a révélé des tendances à long terme dans les particules de $SO_4^=$ pour tous les secteurs, sauf pour le secteur sud-ouest où des sources importantes sont situées sur la côte est des États-Unis. On peut en dire autant du NO_3^- total, sauf qu'un secteur supplémentaire en direction de l'Est vers l'Atlantique ne révélait aucune tendance. Pour le SO_2 à Kejimkujik, tous les secteurs ont affiché des diminutions considérables d'un facteur 2 à 10 entre 1981 et 1987. La baisse la plus importante a été enregistrée dans le secteur au large de l'océan Atlantique (qui comprend Halifax). Entre 1980 et 1985, les émissions de SO_2 en provenance de deux centrales thermiques à Halifax ont diminué, passant de 25 713 tonnes à 5 521 tonnes par année (J. Underwood, rapport). La plus faible diminution a été enregistrée dans le secteur sud-ouest (côte est des É.-U.).

Cette analyse fait ressortir deux faits importants : premièrement, pour décrire la variation temporelle des concentrations d'éléments acides dans l'air et les précipitations, des modèles plus complexes que ceux utilisant une simple tendance linéaire à long terme associée 3 un cycle annuel, s'imposent; deuxièmement, bien que l'on puisse déceler des tendances à long terme, la prudence est de mise si l'on veut les relier à une variation temporelle des émissions de l'ordre de 18 à 30 pour cent. En effet, de nombreux facteurs, dont la variabilité des conditions météorologiques, la longueur de la période

d'enrégistrement des mesures et la continuité de la méthode d'observation, doivent être pris en compte.

3.2.3b VARIATIONS TEMPORELLES DES DÉPÔTS HUMIDES GLOBAUX DE SULFATE ET DE NITRATE SUR LA PARTIE EST DE L'AMÉRIQUE DU NORD

Dans la section précédente, l'analyse portait sur les variations à long terme dans la chimie des précipitations relevées à quelques stations. Dans cette section, on se penchera sur les dépôts humides annuels globaux de sulfate et de nitrate sur l'ensemble de la partie est de l'Amérique du Nord. On peut voir à la figure 3.2.31 la région choisie pour l'intégration de ces dépôts. Les points de grille apparaissant sur les figures sont ceux qui ont servi à produire les cartes d'isolignes de la section 3.2.2b Les valeurs des dépôts de chaque de la grille, multipliées par la superficie (ajustée pour la projection cartographique), sont ensuite additionnées pour l'ensemble de la région, les valeurs résultantes apparaissent au tableau 3.2.9.

Les graphiques en fonction du temps, pour les dépôts humides annuels de $SO_4^=$ excédentaire (corrigés pour l'effet des sels marins) et de NO_3^-, de même que pour les émissions de SO_2 et de NO_x, sont reproduits à la figure 3.2.32 a) et b) respectivement. Dans les deux cas, les valeures sont normalisées par rapport à l'année 1980 qui sert d'année de référence. Pour le soufre, les dépôts globaux suivent de près le changement qui se produit dans les émissions de SO_2, ce qu'illustre bien la figure 3.2.32 a); celle-ce fait ressortir la corrélation entre les émissions et les dépôts. Le coefficient de corrélation de Pearson est de 0,91; il est donc significatif à plus de 99 pour cent.

L'ajustement linéaire, à la gamme des valeurs disponibles, montre un rapport presque unitaire entre les dépôts humides de $SO_4^=$ et les émissions de SO_2. De la période 1980-1982 à la période 1985-1987, les émissions de SO_2 dans la partie est de l'Amérique du Nord ont baissé de 13,5 pour cent (voir le tableau 3.2.5) et les dépôts humides globaux de $SO_4^=$ à l'échelle régionale ont diminué de 17,6 pour cent (tableau 3.2.9).

Par contre, entre les deux périodes, les émissions de NO_x n'ont affiché aucune tendance appréciable, à part des variations d'une année à l'autre de l'ordre de ± 4 pour cent, les trois dernières années accusant une baisse de 2 pour cent par rapport aux trois premières. Les dépôts humides de NO_3^- ont affiché une variation d'une année à l'autre de l'ordre de ± 5 pour cent, les trois dernières années accusant une baisse de 5,1 pour cent par rapport aux trois premières. La figure 3.2.33 b) montre qu'il n'existe pas de corrélation appréciable entre les dépôts de NO_3^- et les émissions de NO_x. Ces variations sont probablement très en deçà des incertitudes des estimations et ne révèlent pas de changement significatif au cours de la période pour les émissions de NO_x, ni pour les dépôts humides de NO_3^-.

X904 DÉPOTS HUMIDES ET SECS DANS LA RÉGION ÉTUDIÉE

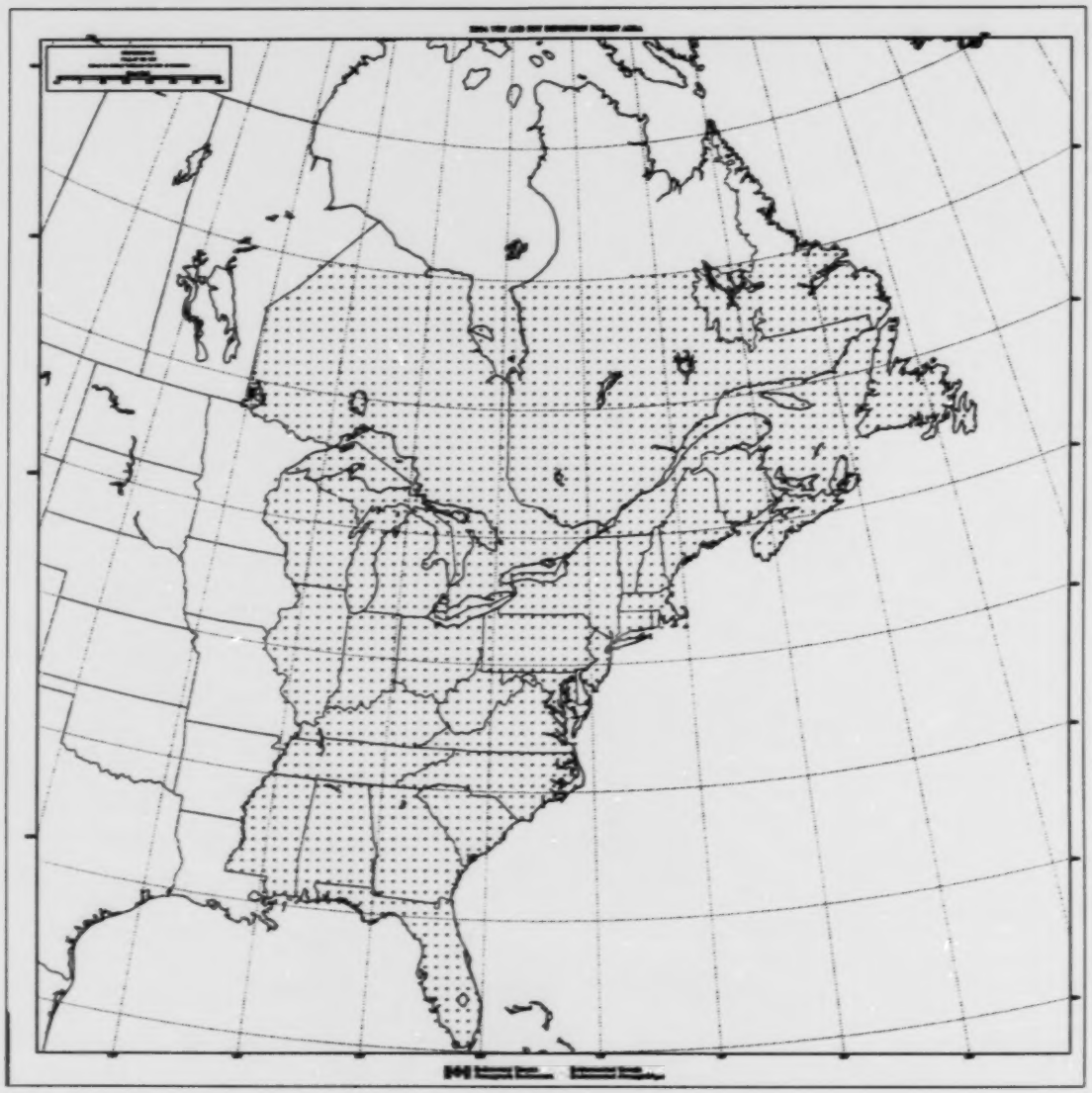


Figure 3.2.31 Superficie utilisée pour obtenir les dépôts humides intégrés de $SO_4^=$ et de NO_3^- dans l'est de l'Amérique du Nord.

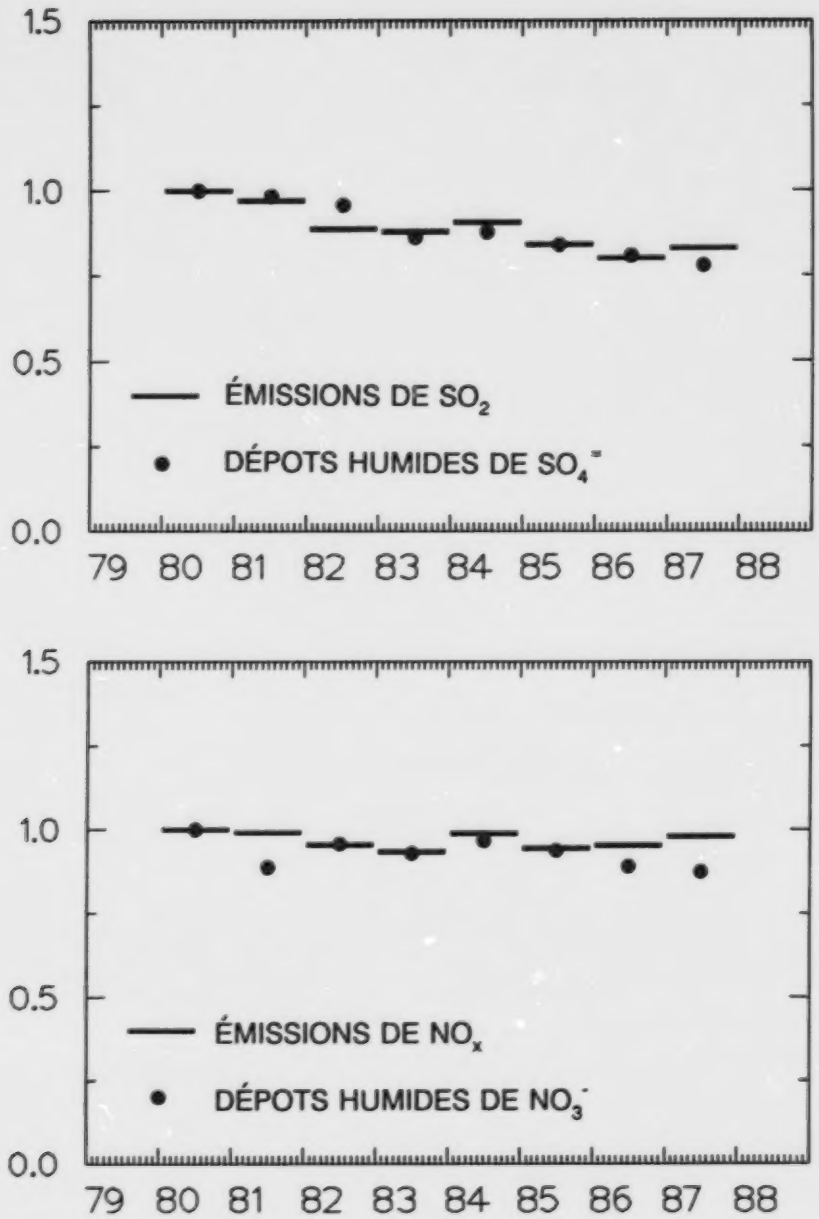


Figure 3.2.32 Séries chronologiques montrant les émissions annuelles et les dépôts humides annuels intégrés pour l'est de l'Amérique du Nord de 1980 à 1987. a) SO_2 et $SO_4^{=}$ en excès et b) NO_x et NO_3^-. Toutes les valeurs ont été normalisées en prenant 1980 comme unité.

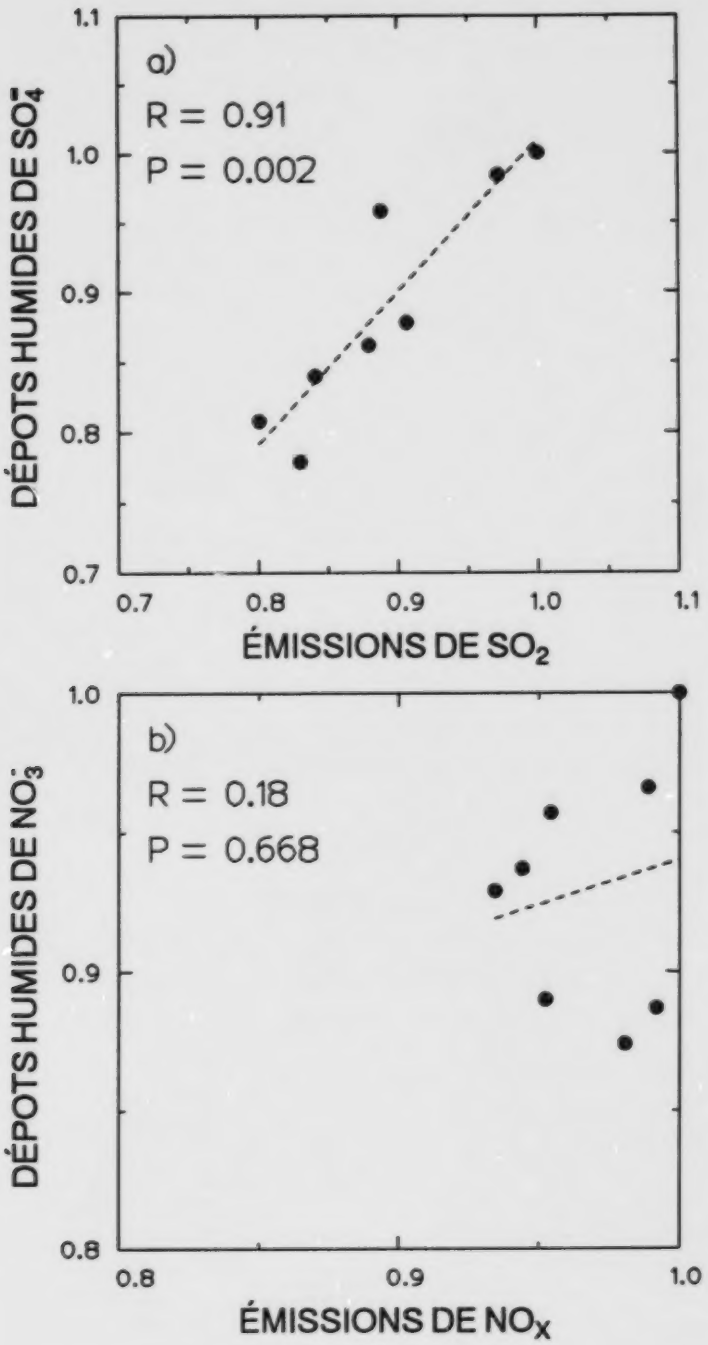


Figure 3.2.33 Corrélation entre les émissions annuelles et les dépôts humides annuels intégrés pour l'est de l'Amérique du Nord de 1980 à 1987. a) $SO_4^=$ en excès et b) NO_3^-. Toutes les valeurs ont été normalisées en prenant 1980 comme unité. Les droites de régression de meilleur ajustement et le coefficient de corrélation de Pearson (R) sont inclus.

Analyse d'incertitude

Une analyse a été effectuée pour vérifier le caractère aléatoire introduit, dans le calcul de la valeur des dépôts globaux pour la région, suite à des erreurs d'interpolation dans l'application de la méthode de calcul des courbes de niveau. A l'aide d'estimations à des points de grille individuels de la variance d'interpolation par la méthode du Krigeage, l'écart type (σ) des dépôts globaux pour la région a été déterminé pour chaque année et pour des moyennes triennales (1980 à 1982 et 1985 à 1987). Tant pour le $SO_4^=$ que pour le NO_3^-, les valeurs de σ ont été les plus élevées en 1980 et en 1981 pour accuser une baisse prononcée en 1982. Au cours de la période de 1982 à 1986, la valeur de σ est demeurée presque constante, puis a diminué à nouveau en 1987. Les valeurs du début et de la fin de la période sont résumées au tableau 3.2.10.

Le tableau montre que, si l'on présume que les observations ponctuelles sont exactes ($\sigma_o=0$)*, on peut déterminer les dépôts globaux à l'intérieur de limites très étroites. En 1980, trois fois l'écart type d'estimation (3σ) représentaient environ ± 2,5 pour cent du dépôt global estimé. En 1987, cette valeur était abaissée à ± 2,0 pour cent, montrant ainsi que la densité des réseaux existants était adéquate pour évaluer de façon satisfaisante les valeurs annuelles des dépôts humides globaux.

Il est possible que les variations d'une année à l'autre dans les estimations des dépôts globaux (tableau 3.2.10) puissent être causées, au moins partiellement, par les changements, d'une année à l'autre, du nombre de mesures disponibles. Plus précisément, on peut raisonnablement se demander si le faible nombre de stations d'observation disponibles au cours de la période 1980 à 1983 (soit 53, 86 et 134 respectivement), comparativement au nombre de stations disponibles pour les années de la période 1985 à 1987 (195, 191 et 170 respectivement) peut ajouter artificiellement aux incertitudes d'interpolation.

On a procédé à un essai de sensibilité pour approfondir cet aspect de la question. Les résultats ont indiqué que les incertitudes dans les valeurs relatives aux dépôts globaux, causées par le moins grand nombre de stations d'observation au cours des premières années, étaient relativement faibles. Les tests ont été effectués en réévaluant les valeurs de dépôts globaux de 1981 à 1987 (tableau 3.2.9) à l'aide des seules stations d'observation (53 au total) qui étaient exploitées en 1980. Certaines années, les stations d'observation de 1980 qui n'étaient plus exploitées furent remplacées par les stations disponibles les plus près. Les différences observées entre des dépôts globaux fondées sur toute la série des stations et les valeurs calculées à partir de la sous-série des stations d'observation de 1980, s'échelonnaient de -0,129 à +0,402 million de tonnes (soit de -1,4 pour cent à + 4,5 pour cent des estimations initiales des dépôts). Elles étaient

* : effet de pépite nul sur les variogrammes du Krigeage

donc considérablement inférieures aux différences constatées entre les valeurs des dépôts globaux des premières années et celles des dernières années.

Le tableau 3.2.10 montre qu'un écart type, sur le graphique représentant les valeurs des dépôts humides de la figure 3.2.32, ne serait pas beaucoup plus large que le diamètre du point. Ainsi, les changements en fonction du temps dans les valeurs de dépôts globaux dépassent largement les limites des erreurs causées par la méthode d'intégration des valeurs elles-mêmes ou de celles causées par les changements dans la densité des stations de surveillance au cours de la période.

Comme les dépôts humides de $SO_4^=$ et de NO_3^- sont sous l'influence des mêmes événements de précipitations et des mêmes conditions météorologiques, l'analyse précédente montre que le $SO_4^=$ et le NO_3^- répondent d'une manière cohérente au comportement des émissions.

On conclut de l'analyse ci-dessus que, à grandes échelles et pour des périodes de temps prolongées, les dépôts humides de sulfate répondent clairement d'une manière quasi linéaire aux changements dans les émissions de SO_2 correspondantes.

Tableau 3.2.9

Dépôts annuels globaux, en MT/année, sur la partie est de l'Amérique du Nord pour la période 1980 à 1987 (région présentée à la figure 3.2.31)

Les unités sont des millions de tonnes par année

	1980	1981	1982	1983	1984	1985	1986	1987	80-82	85-87
$SO_4^=$	10.68	10.51	10.18	9.20	9.38	8.97	8.57	8.32	10.45	8.62
NO_3^-	6.04	5.36	5.78	5.61	5.83	5.66	5.37	5.27	5.73	4.44

Tableau 3.2.10

Écart type d'estimation des dépôts humides globaux de $SO_4^=$ et de NO_3^- et valeurs des dépôts ±3 écarts types de la moyenne (en début et fin de la période, 1980 à 1987)

	Écart type (σ) (millions de tonnes/année)		Dépôts globaux moyenne $\pm 3\sigma$ (millions de tonnes/année)	
	1980	1987	1980	1987
$SO_4^=$	0.082	0.049	10.68±0.25	8.32±0.15
NO_3^-	0.056	0.035	6.04±0.17	5.27±0.10

3.2.3c VARIATIONS TEMPORELLES DES CONCENTRATIONS DE SULFATE ET DE NITRATE DANS L'AIR ET DANS LES PRÉCIPITATIONS A DORSET (ONTARIO)

Une analyse classique de séries chronologiques a été effectuée concernant les données recueillies à Dorset, station située en milieu rural, dans le centre de l'Ontario (appendice 3F). On peut voir où se situe la station de Dorset sur la figure 3.2.28. La période couverte par ces données va du milieu de 1981 à 1986. Les espèces chimiques incluses dans l'analyse étaient le sulfate et le nitrate des précipitations, le soufre total (obtenu en faisant la somme d'anhydride sulfureux et du sulfate) et le nitrate total (nitrate particulaire plus acide nitrique gazeux) dans l'air. L'analyse était axée sur les moyennes saisonnières de concentrations. Le modèle statistique est de la forme suivante :

$$D = T \times S \times C \times I,$$

où D est la série chronologique des concentrations saisonnières (les données);
T est la tendance;
S est la composante saisonnière;
C est le cycle à long term (cycle répétitif d'une durée supérieure à un an),
et I constitue la composante aléatoire.

Les séries chronologiques de données sont présentées aux figures 3.2.28 a,b,c,d.

Des tendances importantes à la baisse avec le temps ont été observées pour le sulfate des précipitations et pour le soufre total de l'air, mais les concentrations de nitrate de l'air et des précipitations ont affiché peu de changement. Les changements réels s'établissent à environ 30 pour cent pour le sulfate des précipitations et à près de 40 pour cent pour le soufre total de l'air; ce qui est conforme aux variations observées dans la chimie des précipitations et de l'air à Chalk River (figure 3.2.29 et 3.2.30), ainsi qu'aux changements notés dans les répartitions spatiales illustrées à la figure 3.2.22. Comme on peut le voir à la figure 3.2.34, la majeure partie de cette diminution s'est produite au cours de la première ou des deux premières années d'enregistrement des données. Il est intéressant de constater que les plus fortes baisses de sulfate dans les précipitations ont été observées pendant l'été, le printemps et l'automne. Pendant l'hiver cependant, peu de changements ont été notés. Ces données peuvent indiquer que les concentrations de sulfate mesurées à Dorset au cours de l'hiver correspondent aux concentrations de fond. Pendant l'hiver, en effet, les phénomènes d'oxydation et de lessivage d'anhydride sulfureux sont à leur minimum. Le cycle saisonnier est bien développé pour le sulfate des précipitations, mais moins bien pour les trois autres paramètres considérés.

Une corrélation inverse a été observée entre la hauteur des précipitations et la composante aléatoire (modèle statistique); celle-ci a été interprétée comme décrivant le lien entre les concentrations et la hauteur des précipitations. A partir de cette corrélation, un facteur de correction a été établi, qui permet de normaliser les concentrations en

fonction d'une hauteur standard de précipitations. L'effet de la correction apparaît à la figure 3.2.35a,b qui reproduit les courbes des séries chronologiques des concentrations de sulfate et de nitrate dans les précipitations après normalisation en fonction d'une même hauteur des précipitations. Ce processus, qui élimine les principaux effets de la variabilité météorologique, permet de mieux cerner les cycles saisonniers et la tendance à long terme (s'il en est).

3.2.3.d RELATIONS SOURCE-RÉCEPTEUR ÉTABLIES PAR DES ÉTUDES QUÉBÉCOISES RELIÉES À LA DISTRIBUTION DES ÉMISSIONS-DÉPÔTS

Pour la province de Québec, des études sur l'analyse statistique de tendances concernant certains paramètres des précipitations acides ont été réalisées.

i) Dans une thèse récente, Vachon (1988) a effectué une analyse statistique de l'évolution temporelle de la concentration de trois ions ($SO_4^=$, NH_4^+ et NO_x) à l'aide de données provenant de quatre stations d'observation du réseau québécois d'échantillonnage des précipitations (incluant Forêt Montmorency), sur une période de cinq ans. Bien que des statistiques descriptives tendent à montrer qu'il existe une composante saisonnière dans les séries de $SO_4^=$, NO_x^- et NH_4^+ de même qu'une tendance à la baisse dans les séries de NH_4^+ à une station et dans les concentrations de NO_x à une autre station, Vachon a montré que cette composante saisonnière et ces tendances apparentes n'étaient pas étayées par les modèles de séries chronologiques de Box et Jenkins qu'il a employés dans son étude.

ii) Pinard (1989) a examiné l'évolution avec le temps de deux indicateurs de la qualité de l'environnement, notamment d'un indicateur de sulfate et d'un indicateur de pH, de 1981 à 1986. L'indicateur de pH est défini comme le pourcentage annuel de précipitations hebdomadaires dont le pH est inférieur ou égal à 4,6 pour une région homogène. L'indicateur de sulfate est défini comme le pourcentage des précipitations hebdomadaires dont la concentration de sulfate est supérieure ou égale à 32 μeq/l (1,54 mg/l) sur une base annuelle et pour une région homogène.

Les deux indicateurs suivent approximativement les mêmes tendances, caractérisées par une valeur minimale en 1983, situation qui ne concorde pas avec les variations dans le $SO_4^=$ des précipitations observées à Montmorency (figure 3.2.29a), qui ont atteint un sommet en 1983-1984. Pour l'ensemble du Québec, Pinard a constaté un coefficient de corrélation appréciable de 0,85 entre les indicateurs, ce qui confirme la relation bien connue qui existe entre le pH et les sulfates.

Il a également examiné l'évolution temporelle de l'ensemble des émissions de SO_2 de source anthropogène aux États-Unis, en Ontario et au Québec pour les années

Il a également examiné l'évolution temporelle de l'ensemble des émissions de SO_2 de source anthropogène aux États-Unis, en Ontario et au Québec pour les années 1982 à 1985 inclusivement. Les émissions totales affichent un minimum relatif en 1983, mais la corrélation avec les indicateurs de $SO_4^=$ et pH susmentionnés n'est pas significative.

Finalement, Pinard a calculé la corrélation entre les totaux annuels de précipitations et chacun des deux indicateurs. La corrélation avec l'indicateur de $SO_4^=$ a une valeur de -0,83 et est significative à 95 pour cent.

Pinard souligne qu'il faudra plus de cinq ans d'observations pour démontrer clairement l'existence de tendances possibles dans l'acidité des précipitations.

Fig. a Concentration saisonnière de sulfate dans les précipitations

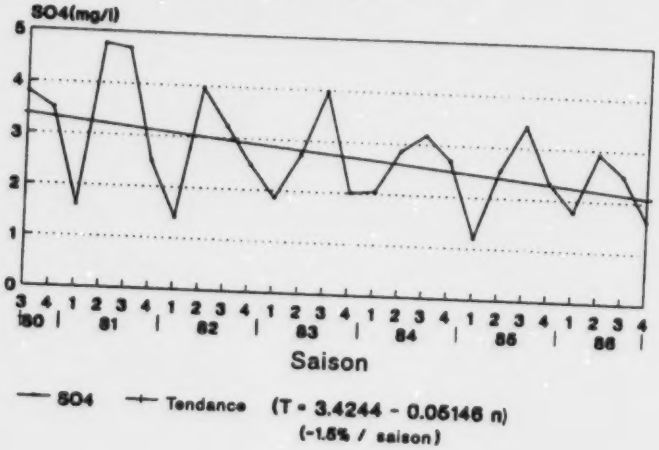


Fig. b Concentration saisonnière de sulfure total dans l'air

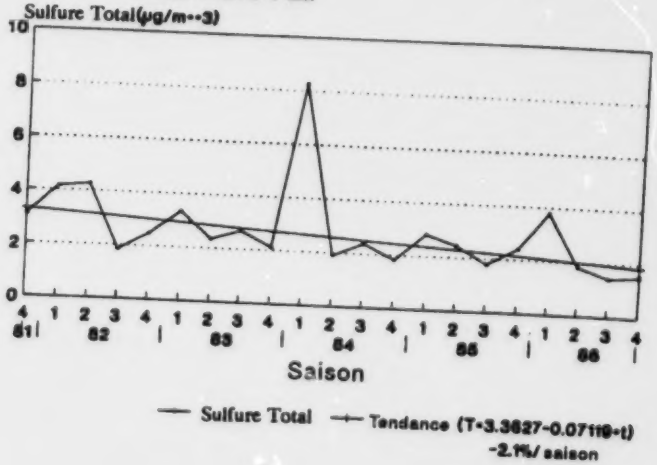


Fig. c Concentration saisonnaière de nitrate dans les précipitations

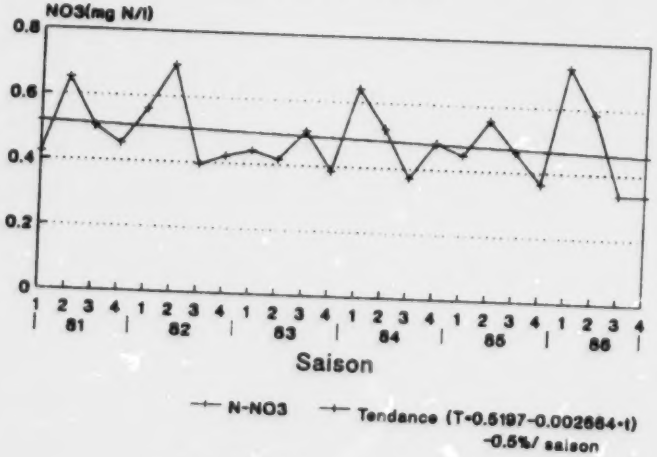


Fig. d Concentration saisonnière de nitrate total dans l'air ambiant

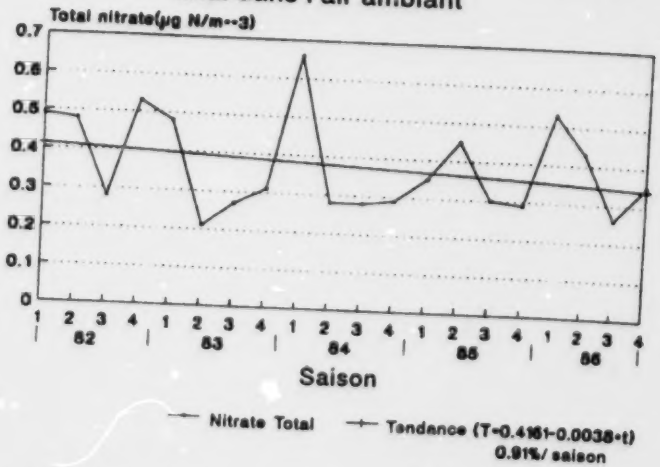


Figure 3.2.34 Variation en fonction du temps des concentrations de sulfates et de nitrates dans l'air et dans les précipitations à Dorset (Ontario).

Fig. a Concentration saisonnière de sulfate dans les précipitations normalisées

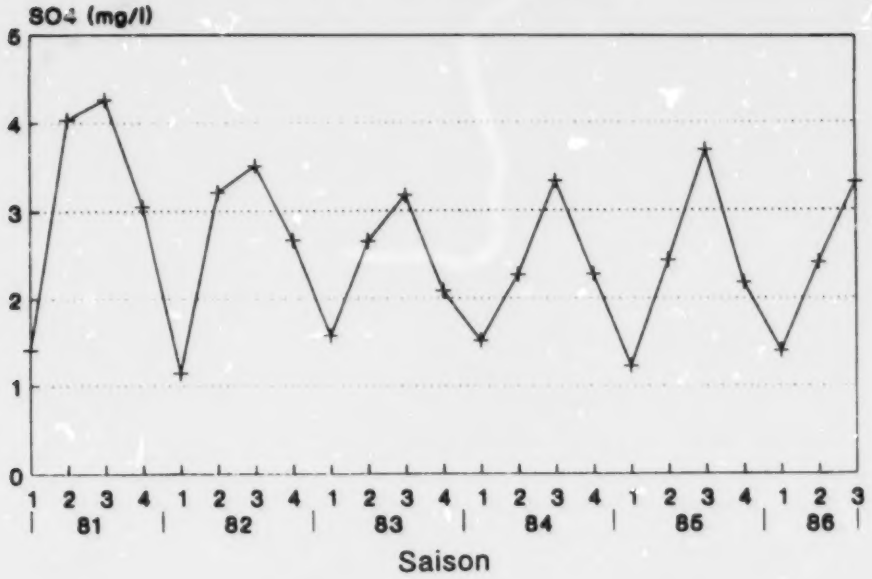


Fig. b Concentration saisonnière de nitrate dans les précipitations normalisées

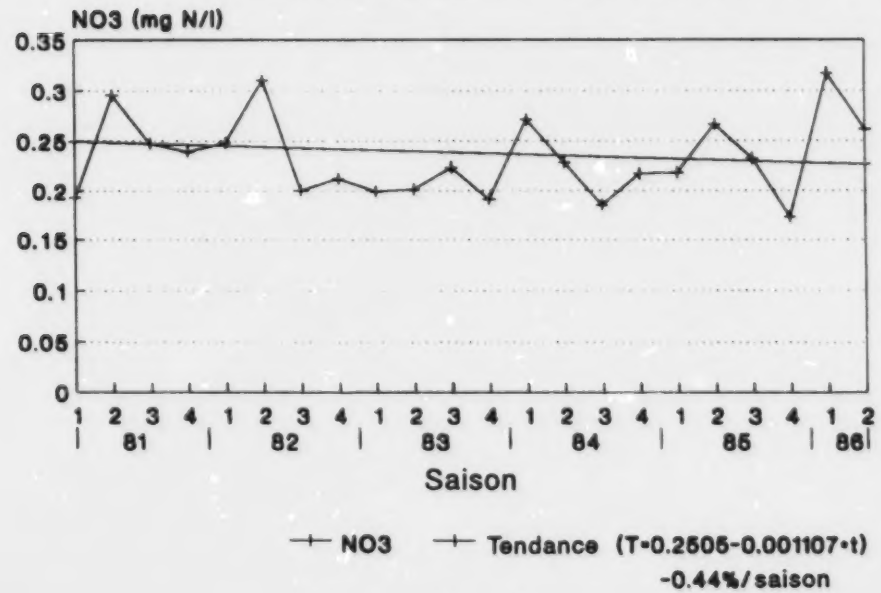


Figure 3.2.35 Concentrations saisonnières de sulfates et de nitrates pondérées en fonction de la quantité de précipitations à Dorset (Ontario).

3.2.3.e TENDANCES DANS LES CONCENTRATIONS D'OZONE DE SURFACE EN ONTARIO

L'ozone peut être le produit du smog photochimique dans lequel les oxydes d'azote et les hydrocarbures réagissent en présence des rayons du soleil. Il en existe donc un lien avec le problème des précipitations acides. La tendance et le cycle de vie de l'ozone en Ontario ont été étudiés par de nombreux chercheurs depuis le milieu des années 1970 (Chung, 1977; Yap et al., 1977, 1988; Shenfeld et al., 1978; Mukammal et al., 1982, 1985; Davis et al., 1984, 1986; Heidorn et Yap, 1986; Kurtz et al., 1989). A l'heure actuelle, il existe un réseau de 47 stations de surveillance de l'ozone en Ontario, pour l'étude du transport de l'ozone sur de grandes distances et pour fournir de l'information destinée à permettre l'évaluation des dégâts imputables à l'ozone sur les récoltes. Les résultats recueillis au cours de la dernière décennie grâce à ce réseau (fondés sur 23 stations d'observation où des mesures sont enregistrées depuis 10 ans) montrent que, sauf pour l'année 1988, la concentration provinciale moyenne d'ozone est restée relativement constante (figure 3.2.36a). On note une certaine variabilité à certains endroits, mais aucune tendance apparente. Les données montrent également que la norme ontarienne de la qualité de l'air pour l'ozone (moyenne horaire de 80 ppb) est fréquemment dépassée (figure 3.2.36b). Ces fluctuations de l'ozone ne s'accompagnent pas d'une tendance particulière, mais, en 1988, les concentrations estivales d'ozone ont été inhabituellement élevées et s'accompagnaient, la plupart du temps, d'un dépassement de la norme relative à l'ozone. Ces dépassements surviennent surtout au cours des mois d'été et sont fortement influencés par les conditions météorologiques, notamment par le déplacement des systèmes synoptiques. Les concentrations élevées d'ozone qui tendent à couvrir de vastes régions de l'est de l'Amérique du Nord (y compris le sud de l'Ontario) se trouvent généralement à l'arrière des anticyclones ou dans les secteurs chauds des dépressions. Pour analyser les épisodes d'ozone et leur rapport avec les conditions météorologiques, on recourt aux "jours-épisodes". Ceux-ci sont définis comme des jours pendant lesquels des concentrations élevées d'ozone (supérieures à la concentration horaire maximale de 80 ppb), sur un vaste territoire (des centaines de kilomètres), ont été notées simultanément dans plus de huit stations de surveillance. On utilise aussi la notion d'"épisodes", qui sont définis comme des événements distincts associés aux jours-épisodes.

Pour la période 1979 à 1988, sur le sud de l'Ontario, on a observé des "jours-épisodes" en moyenne 16 fois par année pour un maximum de 36 en 1988 et un minimum de 7 en 1982. L'analyse, avec rétrotrajectoires des parcelles d'air (durée de 2 jours), de la fréquence des jours-épisodes de O_3, indique pour la période 1979 à 1985 (Yap et al., 1988) que les trajectoires atteignent généralement le sud de l'Ontario suivant l'axe sud/sud-ouest en passant au-dessus de régions urbaines très industrialisées des É.-U.; ces régions potentiellement émettrices de O_3 et de ses précurseurs (figure 3.2.37). De plus, des conditions périodiques sur le sud de l'Ontario, pour la période 1979 à 1988, sont invariablement associées à des courants en provenance des É.-U. (environ 95 pour cent

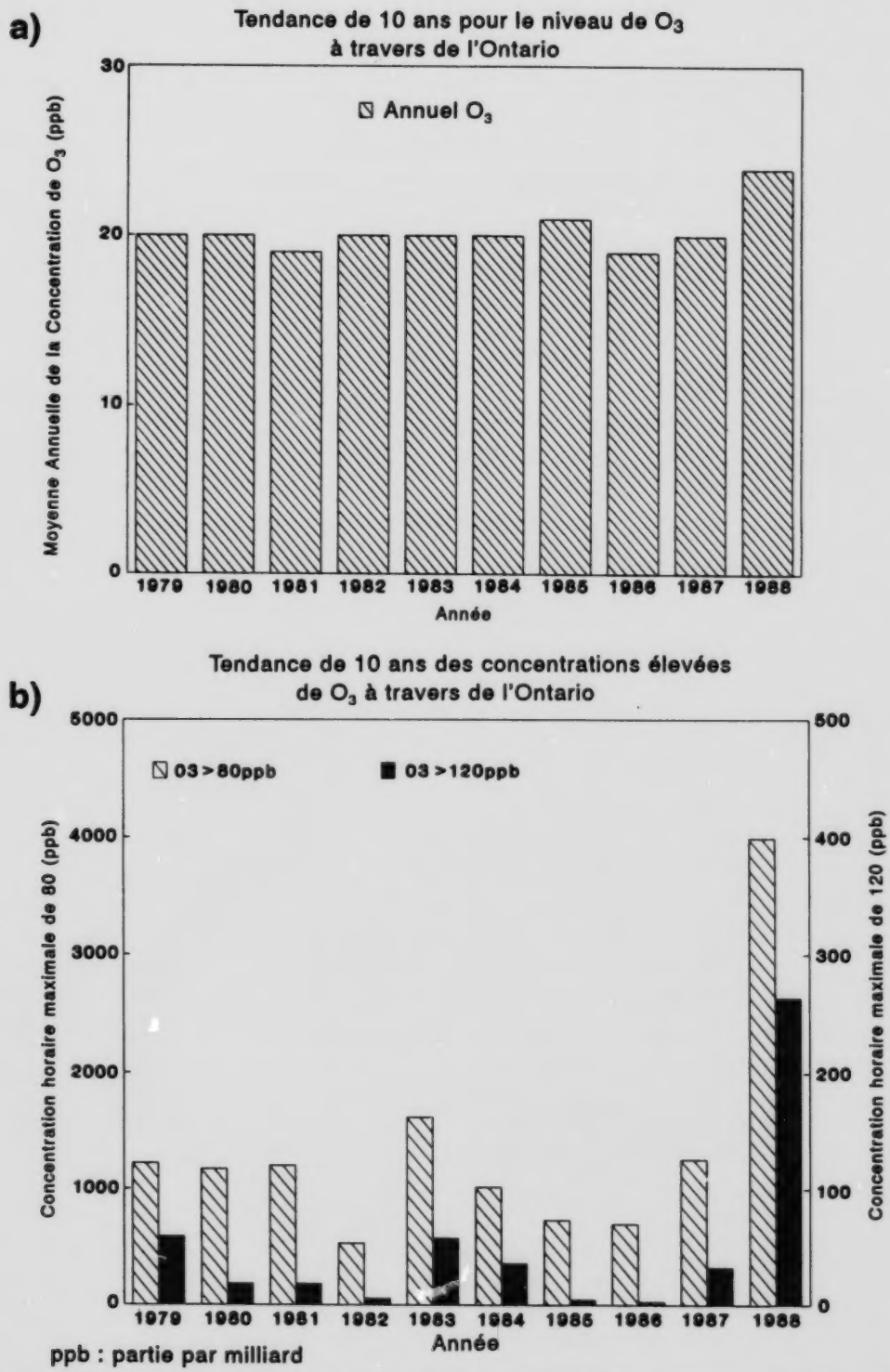


Figure 3.2.36 Tendances échelonnées sur dix ans des concentrations d'O_3 et des cas de dépassement de 80 parties par milliard (80 ppb) dans tout l'Ontario.

des cas survenus au cours de la période décennale). Souvent, l'incidence généralisée des concentrations élevées de O_3 sur le sud de l'Ontario à un moment donnée n'est pas exclusive à l'Ontario; mais elle est possiblement l'expression de l'extension vers le nord du problème du O_3 dans la partie est de l'Amérique du Nord.

Il a été établi que de fortes concentrations de O_3 peuvent se former et être transportées avec le vent, en aval des villes d'envergure moyenne ou grande. On a déjà observé ce phénomène au sud de l'Ontario, dans des régions situées à l'est et au nord-est de la région métropolitaine de Toronto et à l'est de Sarnia (Lusis et al., 1976, 1985). La figure 3.2.38 montre la répartition spatiale des maximums horaires moyens de O_3 pour les 164 jours-épisodes observés au cours de la période 1979 à 1988. Sur cette figure, on note une baisse des concentrations de O_3 dans la région urbaine de Toronto-Hamilton, qui sont imputables aux intéractions avec le NO. On croit qu'il y a des concentrations élevées de O_3 sous le vent, en aval de la région de Détroit-Windsor-Sarnia, mais un phénomène analogue en aval (c.-à-d. au nord-est) du corridor Toronto-Hamilton n'est pas évident. Sur le plan climatique, il semble que, sur le sud de l'Ontario, l'impact local des concentrations de O_3 soit généralement faible; c'est pourquoi, des mesures locales de lutte seraient relativement inefficaces pour abaisser le nombre des cas de dépassement de la norme de qualité de l'air pour le O_3.

En conclusion, l'examen des données sur l'ozone en Ontario, pour la dernière décennie, indique qu'il n'y a pas de tendance apparente à long terme dans les concentrations d'ozone au niveau du sol. Cette conclusion s'accorde avec les taux d'émission relativement constants de NO_x de la région, bien qu'on ne connaisse pas bien les variations correspondantes des émissions d'hydrocarbures (autres précurseurs de l'ozone). L'analyse météorologique des données relatives à l'ozone a clairement démontré l'importance des sources émettrices situées aux États-Unis dans les cas de dépassement de la norme de la qualité de l'air pour l'ozone, sur le sud de l'Ontario.

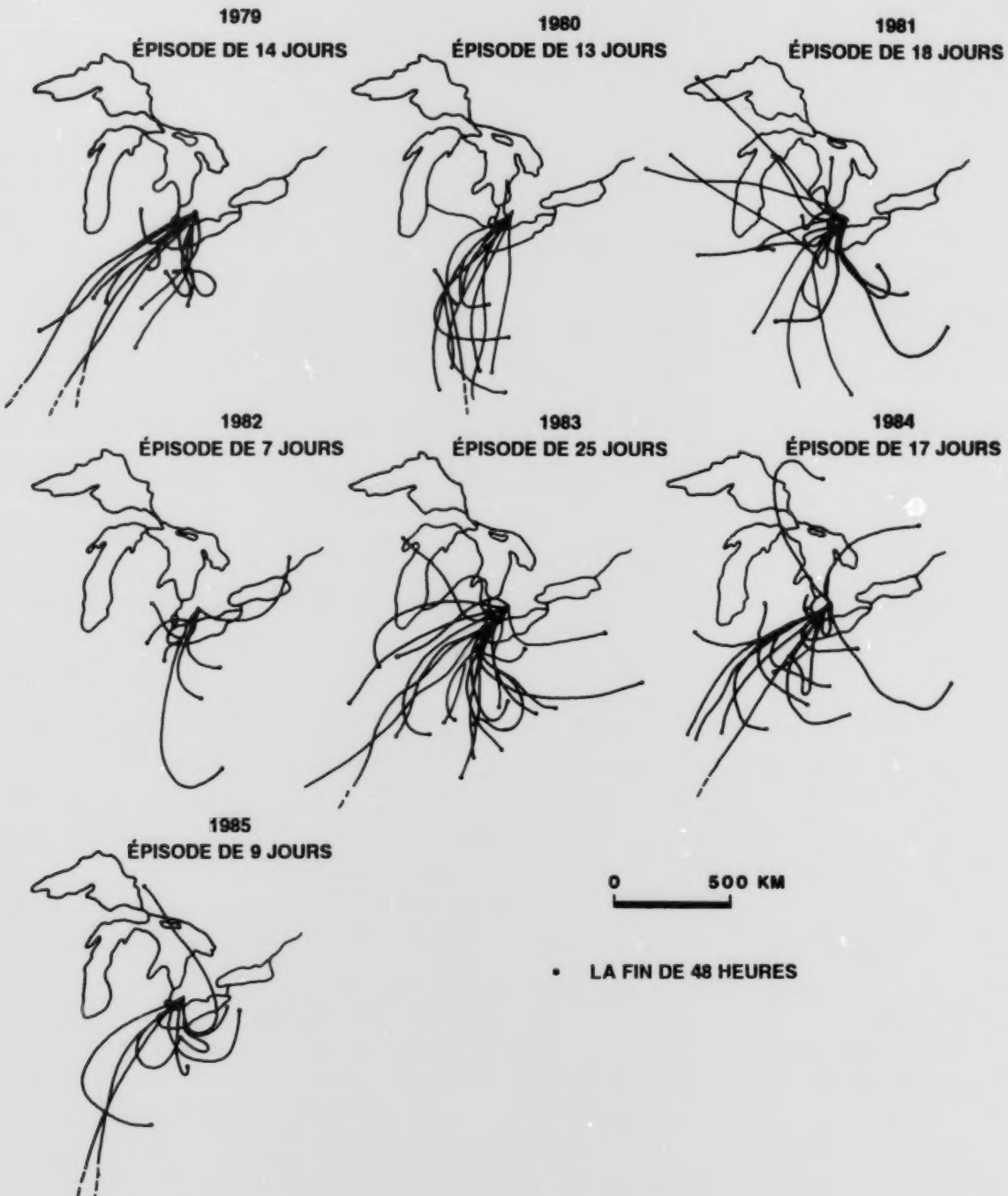


Figure 3.2.37 "Jours épisodes" au cours desquels des teneurs élevées d'O_3 dépassant 80 parties par milliard (ppb) ont été enregistrées à plus de 8 emplacements de surveillance dans le sud de l'Ontario de 1979 à 1985.

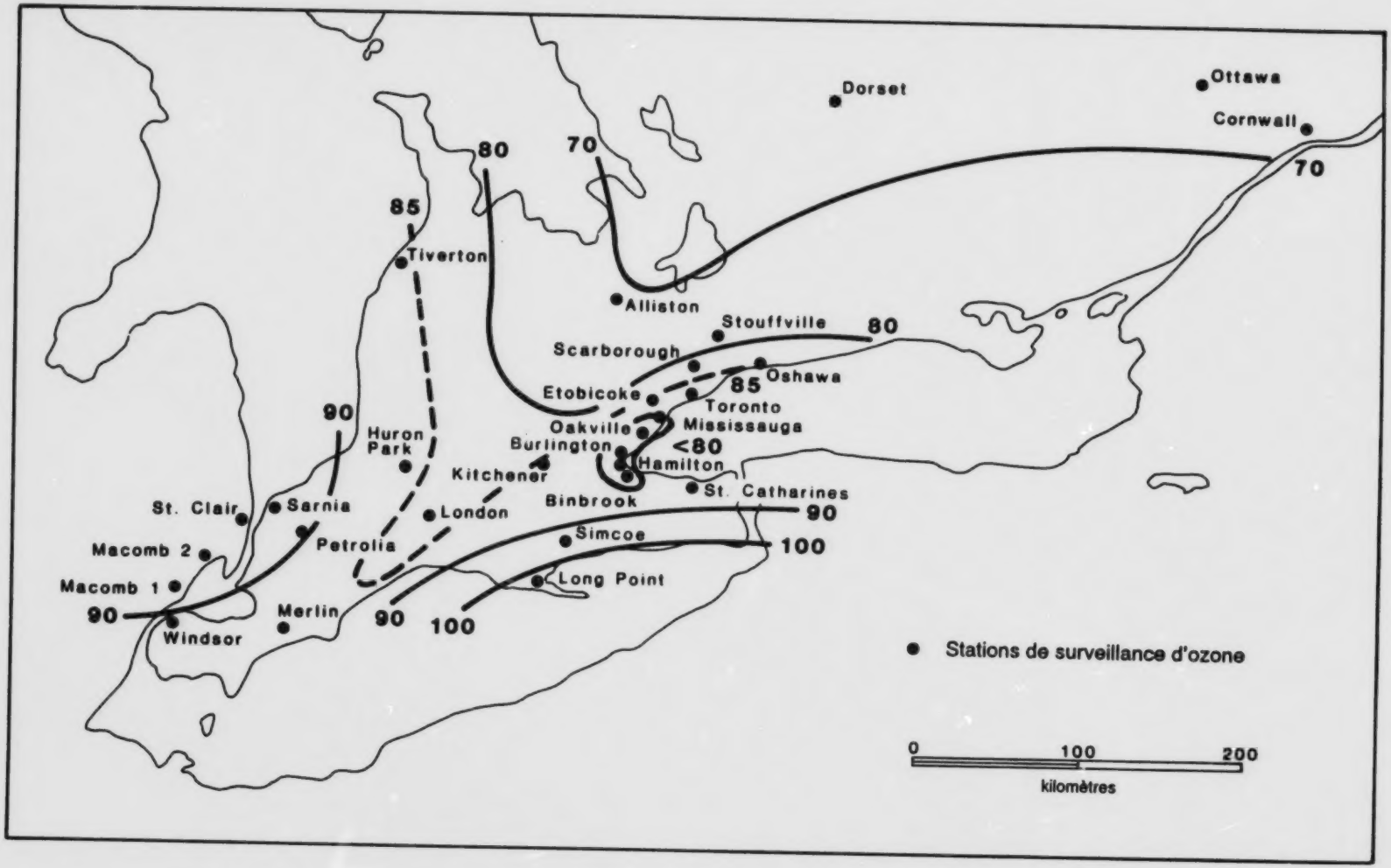


Figure 3.2.38 Moyennes des concentrations horaires maximales d'ozone (O_3) calculées pour 144 jours épisodes dans le sud de l'Ontario.

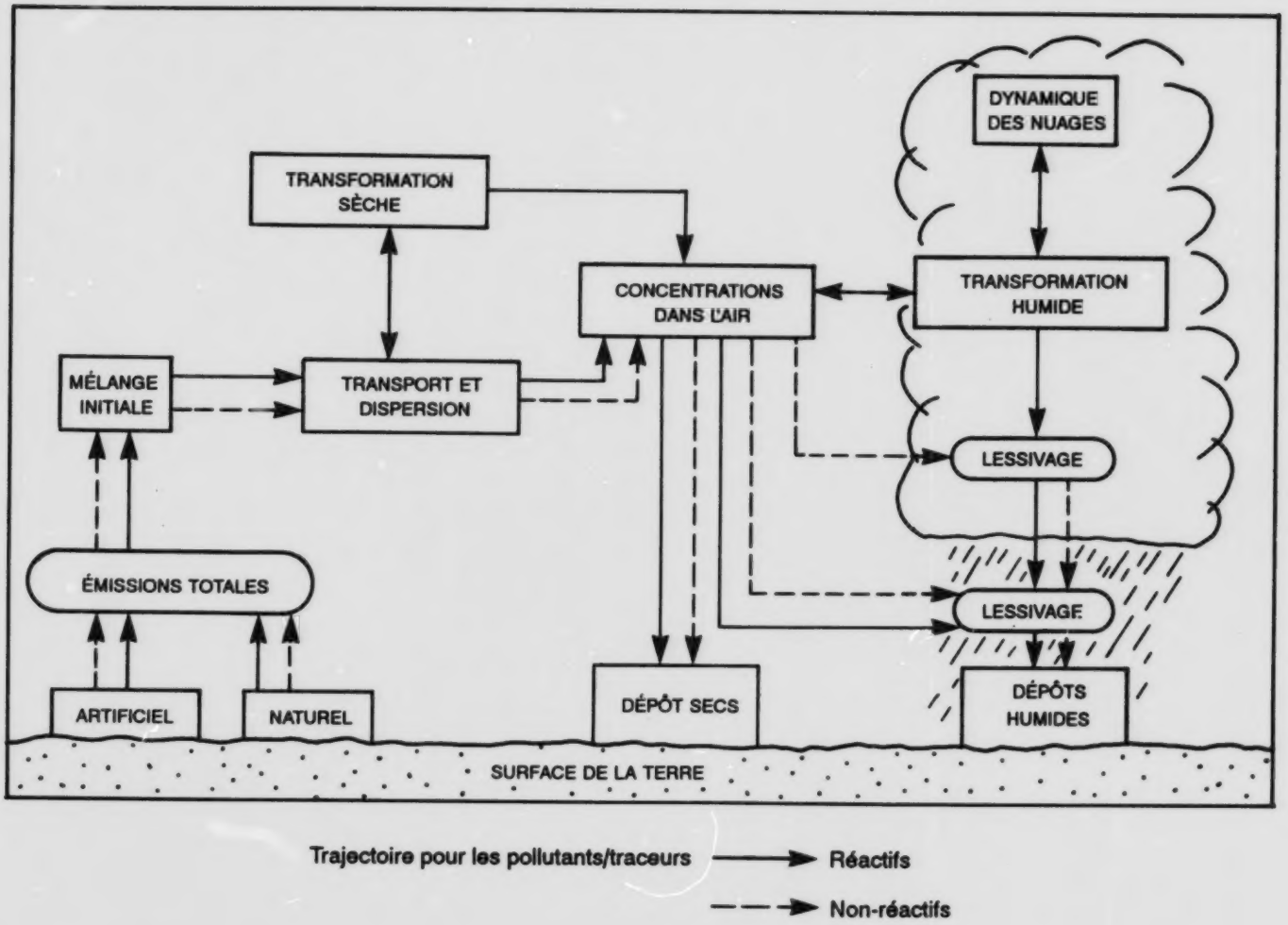


Figure 3.2.39 Diagramme schématique illustrant les principales voies de déplacement des polluants et des traceurs réactifs et non réactifs dans l'atmosphère.

3.2.4 RAPPORTS SOURCE-RÉCEPTEUR ÉTABLIS PAR DES TRACEURS ATMOSPHÉRIQUES

3.2.4.a INTRODUCTION

Dans la présente section, les traceurs atmosphériques seront considérés au plus large et seront donc définis par leur appartenance à l'un ou l'autre des groupes suivants :

i) les polluants de source anthropique eux-mêmes;
ii) les éléments traces qui ont un rapport connu avec les polluants anthropiques;
iii) les éléments traces naturels relâchés dans certaines régions géographiques connues; et
iv) les traceurs artificiels délibérément introduits dans l'atmosphère à un endroit et à un moment connus - soit seuls, soit en association avec des polluants. Les traceurs de cette catégorie peuvent être chimiquement réactifs ou inertes.

Après leur émission dans l'atmosphère, les traceurs suivent la trajectoire générale et sont soumis à l'action de processus tels qu'illustrés à la figure 3.2.39 (Summers, 1982). L'importance relative de ces processus dépend de la catégorie à laquelle appartient le traceur considéré. Par exemple, s'il s'agit d'un polluant réactif comme le SO_2 et le NO_x ou d'un traceur artificiel réactif, l'action de tous les processus, y compris celle des transformations chimiques, est importante. Cependant, pour les traceurs artificiels non inertes comme le perfluoromonométhylcyclohexane (C_7F_{14}) utilisés dans l'expérience CAPTEX 1983 à travers les Appalaches et dans l'expérience ANATEX 1987 à travers l'Amérique du Nord, seule l'action des processus de transport compte.

À l'échelle régionale et continentales qui convient au transport des dépôts acides et des polluants atmosphériques sur de grandes distances, il va de soi que les traceurs ne peuvent être transportés d'une région émettrice (source, S) à une région réceptrice (récepteur, R), sauf si les vents soufflent effectivement de S jusqu'à R. Ainsi, la situation météorologique synoptique qui, à son tour, détermine le champ de transport du vent, est responsable du fait que la source S a des effets sur le récepteur R, un jour donné, et détermine, en moyenne sur une période donnée, le laps de temps pendant lequel le récepteur R subit l'influence de sources diverses. L'évaluation quantitative de la contribution en pourcentage d'une source S donnée à la contamination d'un récepteur R donné est plus difficile à établir pour deux raisons principales : i) deux ou plusieurs sources situées à des distances différentes en amont peuvent avoir une part de responsabilité dans la concentration de traceur relevée sur une trajectoire de masse d'air donnée et ii) les traceurs présents dans la masse d'air peuvent être assujettis à n'importe lequel des processus de transformation et de réduction (dépôts secs et humides) et des processus dynamiques (transport et dispersion), ou à tous ces processus, pendant leur cheminement de la région émettrice à la région réceptrice. Ces processus peuvent être intégrés à des modèles mathématiques de simulation et les rapports quantitatifs source-récepteur peuvent être déterminés tel que décrit au chapitre 3.3.

Dans cette section, on élaborera sur l'utilisation des données d'observation de traceurs en relation avecles répartitions spatiales dont il a été question dans les sections précédentes : on intégrera des notions sur le transport atmosphérique et certaines connaissances empiriques ou semi quantitatives des processus atmosphériques agissant sur les traceurs. De cette façon, les rapports quantitatifs source-récepteur pourront être examinés à deux niveaux. Tout d'abord, au niveau de la détermination des régions émettrices susceptibles d'agir sur une région réceptrice donnée et, deuxièmement, au niveau de l'évaluation empirique de la contribution relative de régions émettrices différentes à l'apport reçu par une région réceptrice donnée.

Les premières études sur la pollution étaient axées sur deux problèmes principaux : tout d'abord, le voisinage immédiat des grandes sources industrielles ponctuelles (fonderies, centrales thermiques, etc.) où les émissions de fumée constituaient un traceur évident des polluants gazeux et, deuxièmement, la pollution urbaine où le smog et le brouillard de glace (dans les régions froides) constituaient des traceurs moins bien définis, mais tout de même visibles, des résidus en aval de cette pollution. Ces deux problèmes étaient limités à l'échelle locale (environ 100 km). Ce n'est qu'au début des années 1970 que le transport sur de plus grandes distances des polluants troposphériques anthropogènes a été documenté en Europe et pour la première fois au Canada, par Munn (1973). Les sections suivantes abordent seulement les diverses méthodes employées pour évaluer les rapports quantitatifs source-récepteur à des échelles avaient de quelques centaines à plusieurs milliers de kilomètres et relevant du transport sur de grandes distances des polluants et des dépôts acides.

3.2.4.b STRATIFICATION DES DONNÉES PAR SECTEUR DE VENT AUX STATIONS DE SURVEILLANCE

L'étude des liens source-récepteur évoqués à la section 3.2.2b peut être perfectionnée encore, par la stratification des observations aux stations de surveillance en fonction du vent local, de la masse d'air ou de la direction de l'apport. Cette façon de procéder est bien adaptée à l'observation des sites à la périphérie des zones d'émission, car il existe alors une différence marquée entre les flux d'air en provenance des diverses régions émettrices et les flux provenant des régions non émettrices. Ainsi, Rodhe et al., (1972), Forland (1973) et Buch et al., (1976) ont-ils pu démontrer de façon convaincante que les plus fortes concentrations de suie et de sulfate dans l'air ou que les concentrations de sulfate dans les précipitations sur le sud de la Scandinavie étaient toujours accompagnées de vents des secteurs entre le sud-ouest et le sud-est. Ces secteurs regroupent les régions montrant les plus fortes émissions de SO_2 en Europe. Les premières applications de l'analyse par secteur en Amérique du Nord visaient les données de Whiteface Mountain, dans l'État de New York (Samson, 1978) et celles de Toronto (Ontario) (Anlauf et al., 1980). Dans les deux cas, les concentrations atmosphériques de sulfate charriées dans les flux du sud-ouest étaient d'un ordre de grandeur supérieures aux concentrations dans l'air en provenance du nord canadien. Le sud-ouest regroupe les régions de plus forte densité d'émissions de SO_2, le long de la vallée de l'Ohio.

Depuis l'obtention de ces premiers résultats, l'analyse des données par secteur de vent est devenue une opération de stratification statistique presque courante pour interpréter les données d'observation. Les données en provenance de nombreuses stations sont maintenant stratifiées par secteur et elles confirment les conclusions antérieures. L'inconvénient majeur de la méthode est que souvent, plusieurs régions émettrices de polluants peuvent se situer dans un même secteur; c'est pourquoi, il n'est pas possible, à partir des seules observations, d'établir la contribution relative de la source située à proximité, par rapport à la contribution de la source éloignée.

3.2.4.c ANALYSE DES TRAJECTOIRES DES MASSES D'AIR

La direction du vent local peut être influencée par les caractéristiques topographiques locales, c'est pourquoi la stratification des données par secteur fondée sur le vent local peut représenter incorrectement le secteur d'où provenait le flux d'air, quelques jours plus tôt. En outre, les masses d'air suivent souvent des trajectoires incurvées, c'est pourquoi l'air qui arrive d'un secteur (e.g., sud-ouest) peut venir, à plus grande distance, d'un autre secteur (e.g., ouest). Pour surmonter ces problèmes, l'utilisation de rétrotrajectoires (période antérieure de 1 à 5 jours), plutôt que du vent local, est maintenant la voie privilégiée. L'information sur les trajectoires peut être combinée aux données de surveillance de trois façons différentes :

i) par des études de cas reliés à des événements de pollution atmosphérique particuliers;

ii) par la production de résumés statistiques des données de surveillance recueillies dans une station, associés à des classifications de trajectoire (par secteur ou origine);

iii) par l'établissement d'une climatologie des profils de trajectoire, associée à des classifications des données de surveillance (la tranche supérieure de 5 pour cent des concentrations, par exemple).

Les méthodes i) et iii) reposent sur une caractéristique particulière des dépôts humides relevés dans de nombreuses stations de surveillance, c'est-à-dire sur une fraction importante du dépôt annuel de $SO_4^=$ (et d'autres ions) qui survient en quelques jours seulement. Après examen des données en Europe, Smith et Hunt (1978) ont défini de la façon suivante les "jours-épisodes" à un endroit donné : les jours où se produisent les dépôts humides les plus abondants qui, accumulés, représentent 30 pour cent du total annuel des dépôts humides. Ils ont aussi défini l'"épisodicité" comme étant le pourcentage des jours avec précipitations où se produisent, au cours d'une année les jours-épisodes. Ils ont considéré qu'une station recevait des dépôts très épisodiques si l'épisodicité était inférieure à 5 pour cent. En Europe de l'ouest et en Scandinavie, l'épisodicité s'échelonne généralement de 1 à 12. On observe le même phénomène au Canada.

Sirois et Barrie (1988) ont employé une définition inverse de l'épisodicité. Ils ont défini l'épisodicité comme le pourcentage des dépôts totaux sur une période, correspondant aux premiers 20 pour cent des événements de dépôt les plus importants. Les concentrations atmosphériques (qui peuvent être employées de concert avec la vitesse de dépôt pour évaluer le flux des dépôts secs) se comportent d'une façon analogue (Sirois et Barrie, 1988); une grande partie de l'exposition annuelle globale (concentration x période concernée) à la pollution atmosphérique survenant sur une faible proportion des jours. Sur cette base, les valeurs caractéristiques de l'épisodicité des dépôts de $SO_4^=$ dans l'est du Canada sont de 49 à 61 pour cent pour les dépôts secs et de 52 à 70 pour cent pour les dépôts humides. Cette échelle de valeurs des dépôts humides est très semblable à celle qui découle des travaux de Smith et Hunt (1978). Au Canada, l'épisodicité des dépôts humides de NO_3^- est semblable à celle du $SO_4^=$.

i) Études de cas - L'analyse détaillée de jours-épisodes peut renseigner sur des régions émettrices en particulier, comprises dans l'inventaire des émissions (interpolées aux points d'une grille) utilisé en Europe et en Amérique du Nord. Smith et Hunt (1978) se sont penchés sur les événements de dépôts extrêmes enregistrés dans deux stations de surveillance européennes en 1974 - la première au sud de la Norvège et la seconde au sud du Royaume-Uni. Dans les deux cas, les rétrotrajectoires originaient de certaines des sources émettrices les plus importantes dans l'est (pour la Norvège) et l'ouest (pour le Royaume-Uni) de l'Europe.

Un épisode prolongé de dépôts humides a touché le sud de l'Ontario du 28 août au 4 septembre 1981 (Kurtz et al., 1984). Au cours de cette période, il est tombé à Dorset 100 mm de pluie (12 pour cent du total de 1981) associés de 7 kg de $SO_4^=$ par ha de dépôts humides (28 pour cent du total de 1981). Au cours de cette période, les rétrotrajectoires ont affiché un flux constant du SSW, provenant des régions émettrices de SO_2 situées dans les basses terres de la région des Grands Lacs (y compris le sud de l'Ontario et la vallée de l'Ohio).

ii) Stratification des données par secteur de trajectoire - L'analyse des données sur les dépôts humides dans deux stations exploitées à proximité de la frontière canado-américaine par le ministère de l'Environnement de l'Ontario a été effectuée par Tang et al., (1986). Des trajectoires de parcelles d'air avec deux jours de recul ont été employées pour stratifier les données relatives à chaque événement de précipitations suivant trois catégories : celles associées à des trajectoires survolant des sources émettrices des É.-U. seulement, celles reliées à des trajectoires passant au-dessus de sources canadiennes seulement et celles provenant d'origine indéterminée. Comme les stations d'observation étaient situées près de la frontière, il a été relativement facile de distinguer les trajectoires d'origine canadienne de celles d'origine américaine. En cas de doute, cependant, émissions et trajectoires étaient classées dans la catégorie marquée "origine inconnue". La contribution en pourcentage de chacune de ces catégories aux

dépôts totaux observés au cours de la période triennale 1981-1983 a été calculée pour les dépôts de $SO_4^{=}$ et de NO_3^-, tel qu'illustré à la figure 3.2.40. Il est clair que les sources émettrices des É.-U. l'emportent largement sur les sources émettrices canadiennes dans la contribution aux dépôts humides observés dans ces stations de surveillance situées près de la frontière. Pour le $SO_4^{=}$, les sources des É.-U. font une contribution au moins 10 fois supérieure à celle des sources canadiennes. Pour le NO_3^-, les sources des É.-U. font une contribution environ 3,5 fois supérieure à celle des sources canadiennes.

Cette information peut être présentée d'une autre façon par une matrice source-récepteur simple, telle que présentée au tableau 3.2.11.

Tableau 3.2.11

Matrice source-récepteur des dépôts humides de $SO_4^{=}$ et de NO_3^- dans deux stations d'observation du sud de l'Ontario, avec la contribution relative (%) des sources américaines et canadiennes

	Région réceptrice			
Origine	Longwoods		Railton	
	$SO_4^{=}$	NO_3^-	$SO_4^{=}$	NO_3^-
É.-U.	81	79	57	60
Canada	6	7	16	18
Indéterminée	13	14	27	22

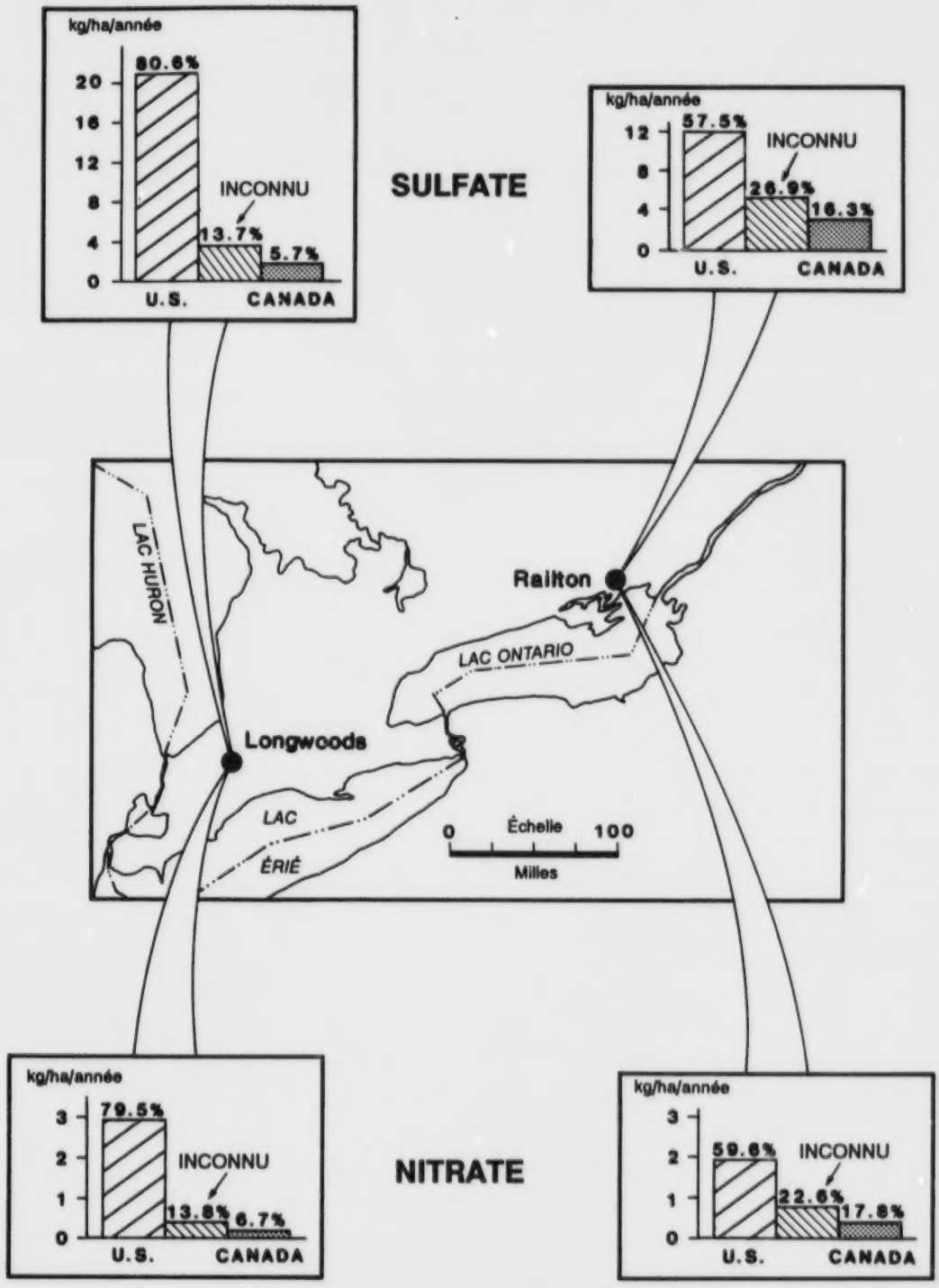


Figure 3.2.40 Répartition entre les sources canadiennes et américaines des dépôts humides a) de sulfates et b) de nitrates enregistrés à Longwoods et à Railton (d'après des données de surveillance de 1981 à 1983 classées selon l'origine des trajectoires atmosphériques.

iii) Climatologie des trajectoires - La nature épisodique des dépôts peut servir à établir des statistiques à long terme des trajectoires des masses d'air associées à diverses classifications des données. Par exemple, en calculant la moyenne de l'ensemble des rétrotrajectoires atteignant une station de surveillance, les jours correspondant à une augmentation du pourcentage des dépôts ou des concentrations, on fait émerger un profil climatologique net qui cerne les régions géographiques émettrices qui contribuent à l'apport reçu par la zone réceptrice. Pour établir ces statistiques, on a eu recours à plusieurs méthodes différentes.

Par exemple, Ashbough (1983) a étudié parmi les trajectoires aboutissant à la région du Grand Canyon, en Arizona, celles associées aux valeurs de sulfate les plus élevées et causant une réduction de la visibilité. Les données relatives aux positions des trajectoires, à tous les pas de temps de six heures avant l'arrivée au Grand Canyon, ont été portées sur une grille et additionnées pour obtenir le temps de séjour dans chaque maille de grille. Ces temps de séjour ont été exprimés en courbes de niveau sur une carte. Une trajectoire dominante est apparue, en provenance d'une zone urbaine du sud de la Californie, et une autre, en provenance des régions où sont situées des fonderies, dans l'Utah et le Nevada. Cette méthode a été modifiée par Poirot et Wishinski (1986) qui ont utilisé des observations sur la visibilité estivale dans le nord-est des É.-U. comme indicateur des concentrations de sulfate. Dans leur analyse, le nombre d'heures des trajectoires passées sur chaque maille de grille a été calculé. Les cartes sur la densité de probabilité ont affiché un profil distinct pour les jours où les concentrations de sulfate étaient élevées lorsque le flux d'air provenait du sud-ouest et, les jours de bonne visibilité associés à un flux du nord-ouest. On a procédé à la correction des probabilités pour tenir compte de la géométrie de l'analyse (e.g., la probabilité qu'une trajectoire sélectionnée au hasard traverse une maille de grille donnée dépend de la distance par rapport au lieu d'observation); les régions qui se retrouvaient avec des temps de séjour prolongés étaient très étroitement associées aux régions dans les États situés au sud des Grands Lacs et dont les émissions de SO_2 sont élevées. En Europe, Strauss et al., (1986) ont eu recours à une variante de cette méthode en appliquant une correction en fonction de $1/t^2$ (t = temps) aux rétrotrajectoires afin de tenir compte de la diffusion des polluants pendant leur déplacement de la région émettrice à la région réceptrice. Ainsi, l'apport de SO_2 mesuré au Donon, dans le nord-est de la France, a été calculé pour chaque maille de grille, puis additionné pour représenter la contribution de chaque pays. Les résultats se comparaient favorablement à ceux obtenus par le modèle numérique de TGD du programme EMEP. Summers (1987) a modifié la méthode de Poirot et Wishinski, en se servant des données réelles du $SO_4^=$ et du SO_2 recueillies par le réseau canadien de surveillance, pour établir la climatologie des trajectoires et pour déterminer les facteurs d'atténuation liés à la distance (Summers et Fricke, 1989). De cette façon, on a pu évaluer la contribution aux jours-épisodes (tranche supérieure de 5 à 10 pour cent des événements) de chaque maille de la grille d'émissions et ensuite établir des rapports quantitatifs source-récepteur semi-empiriques. La figure 3.2.41 présente des exemples de résultats obtenus pour l'apport estimatif en pourcentage de différentes régions

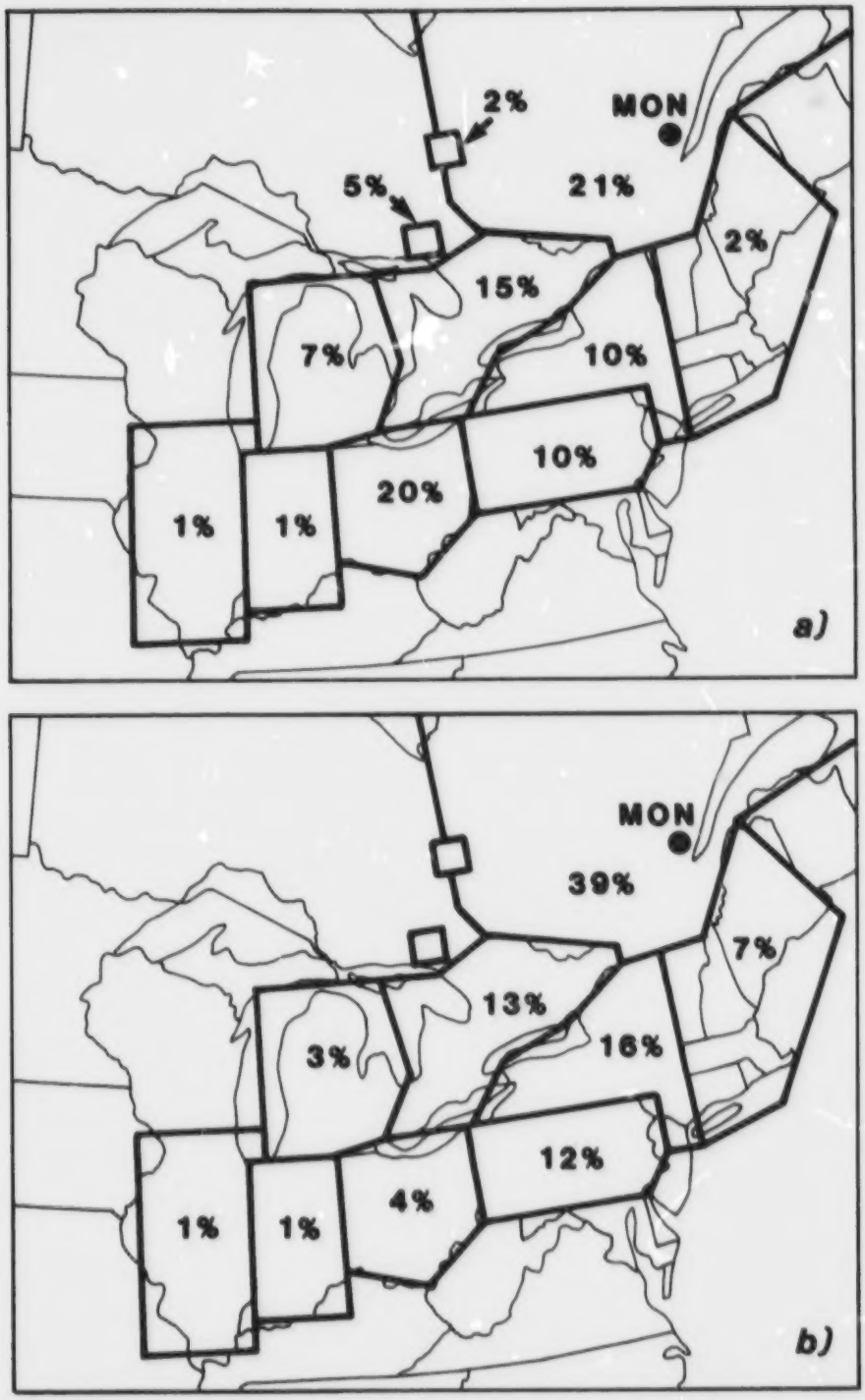


Figure 3.2.41 Pourcentages de contribution de chaque région aux épisodes d'émissions dans l'air ambiant a) de $SO_4^{=}$ et b) de NO_3^{-} enregistrées à Montmorency (Québec) au cours de la période de 1980 à 1984. Un épisode a été défini comme un jour où les concentrations observées atteignaient les premiers 5 % des concentrations maximales.

émettrices aux valeurs épisodiques (tranche supérieure de 5 pour 100) des concentrations atmosphériques de $SO_4^=$ et de NO_3^- observées à Montmorency (Québec). Il faut signaler que, pour le $SO_4^=$, les régions émettrices plus éloignées comme l'Ohio et le Michigan ont un impact considérable, mais que, dans le cas du NO_3^-, l'apport des régions émettrices plus rapprochées comme le sud du Québec, l'État de New York et la Nouvelle-Angleterre est relativement plus important que pour le $SO_4^=$. Cet état de choses est relié aux teneurs du SO_2 et du NO_x à l'émission, mais il témoigne également de distances d'atténuation plus faibles pour le NO_3^- que pour le $SO_4^=$ (Summers et Fricke, 1989). Les régions des fonderies de Sudbury (Ontario) et Noranda (Québec) ont un impact sur les concentrations de $SO_4^=$; en ce qui concerne le NO_3^-, cependant, les émissions ne sont pas décelables. En outre, il est intéressant de constater que les résultats reproduits à la figure 3.2.41 s'accordent raisonnablement bien avec les prévisions établies à l'aide d'un certain nombre de modèles linéaires simples de transport sur de grandes distances.

3.2.4.d MODÉLISATION DES ZONES RÉCEPTRICES

Cette méthode tire parti du fait que les aérosols atmosphériques contiennent de faibles quantités d'éléments chimiques comme l'arsenic (As), l'antimoine (Sb), le sélénium (Se), le vanadium (V), le manganèse (Mn), le zinc (Zn), le cuivre (Cu), l'indium (In), le plomb (Pb) et d'autres. Les méthodes modernes d'analyse chimique, par exemple la méthode PIXE, permet de déceler et de quantifier ces éléments, même s'ils se trouvent présents en quantités infimes. Quand on connaît la variation régionale des émissions de ces éléments-traces pour divers combustibles comme les hydrocarbures et le charbon ou pour le minerai des fonderies, on peut alors, par l'examen des concentrations des éléments recueillis dans les stations éloignées, ou de leurs ratios dans les aérosols, distinguer les unes des autres les sources émettrices en cause. Des hypothèses clés sont à l'origine de l'application de cette méthode. Premièrement, on présume que des mesures des éléments ont été effectuées en nombre suffisant dans les régions émettrices pour permettre l'établissement de fonctions représentatives des émissions. Deuxièmement, on présume qu'il ne se produit aucun retrait sélectif d'éléments, par dépôt sec ou humide au cours du transport, susceptible de faire varier les ratios avec le temps. La première hypothèse est toujours discutable pour certains éléments; la seconde semble raisonnable, car la plupart des éléments sont concentrés dans des aérosols à fines particules (plus petites que 2 μm de diamètre). Après avoir appliqué cette méthode à deux endroits dans le Rhode Island et le Vermont (nord-est des É.-U.), Rahn et Lowenthal (1984, 1985) ont conclu que le nord-est était la principale source émettrice d'éléments d'aérosols diffusés largement au-dessus de toute la partie est de l'Amérique du Nord ou d'éléments enrichis dans les émissions du nord-est (V, Sb, Zn, Mn, par exemple). D'autre part, pour les éléments tels l'As et l'In relevés dans les émissions des fonderies canadiennes et pour le Se et le S décelés dans les émissions de charbon du mid-west, les apports des sources éloignées peuvent égaler ou dépasser ceux du nord-est. Cette méthode fournit donc des indications évidentes du transport sur de grandes distances

et permet de distinguer entre elles les émissions de diverses régions émettrices sur une grande échelle.

Pacyna (1986) a étudié les rapports S-R des éléments traces dans le nord de l'Europe. Cette approche a été appliquée à l'étude de cas individuels à l'aide d'un modèle simple de transport-réduction pour évaluer les concentrations fondées sur un inventaire des émissions sur une grille, pour divers éléments traces. Les estimations établies par le modèle concordent généralement avec les observations en-deçà d'un facteur de 2. Une autre approche consistait à recourir à l'analyse sectorielle; on a constaté que les ratios des Cr, Cu, As, Se, Mn et Sn, par rapport au V, étaient utiles pour différencier les sources émettrices de l'ouest de celles de l'est de l'Europe.

Le principal inconvénient de cette approche relative aux applications des dépôts acides est le fait qu'elle s'applique seulement aux émissions de particules primaires et non à l'aérosol de sulfate obtenu par oxydation du précurseur SO_2 qui est la principale source de $SO_4^=$ dans les précipitations des régions aux dépôts abondants. L'approche est encore controversée pour ce qui est de l'établissement de rapports S-R, comme on peut en juger par les conclusions de Dutkiewicz et al., (1987) et par les travaux de Lowenthal et Rahn (1988).

Des analyses d'éléments-traces ont également été effectuées à partir de filters d'échantillonneurs à grand débit recueillis dans trois stations de surveillance atmosphérique en milieu rural, dans l'est du Canada. À l'automne 1984, 70 échantillons quotidiens furent recueillis à Dorset (environ 200 km au N.N.-E. de Toronto) et 28 échantillons hebdomadaires on journaliers étaient recueillis à Montmorency (environ 70 km au nord de la ville de Québec) ainsi que dans le parc national de Kejimkujik (partie centrale du sud de la Nouvelle-Écosse). À l'aide des seules données de Dorset et des distributions de fréquences relatives aux trajectoires des masses d'air à 925 mb, Barrie (1988) a démontré clairement que les plus fortes concentrations de Pb à avoir été observées provenaient des zones urbaines du sud et que les teneurs les plus élevées en indium et en arsenic provenaient des fonderies du nord de l'Ontario.

On a poussé un peu plus loin l'application de cette méthode en se servant des rapports isotopiques du Pb, qui sont différents pour le Pb utilisé dans l'essence au Canada de ceux du Pb dans l'essence aux É.-U.; on a ainsi réparti entre les deux pays, le Pb observé dans les aérosols à trois endroits au Canada (Hopper et Barrie, 1988). Les résultats figurent au tableau 3.2.12.

L'étude de Dorset a repris pour deux autres mois (avril et mai) au printemps 1986 (Sturges et Barrie, 1989). Les résultats obtenus sont comparés à ceux recueillis à l'automne 1984, qui sont reproduits au tableau 3.2.13. Les différences s'expliquent par une plus haute fréquence des vents du nord au cours de l'étude du printemps, ce qui a augmenté l'apport des fonderies du nord et réduit la contribution des sources des É.-U.

Tableau 3.2.12

Distribution du Pb atmosphérique (pondérée en fonction des concentrations) à l'aide du ratio Pb-206/207 observé sur des filtres d'échantillonneurs d'air à grand débit, à 3 endroits dans l'est du Canada, à l'automne 1984. On peut voir les incertitudes absolues associées à un écart type.

Station	Nombre d'échantillons	Automobiles canadiennes	Automobiles américaines	Fonderies canadiennes
		Contribution (%)		
Dorset	64	52 ± 3	46 ± 3	2 ± 0.3
Montmorency	23	67 ± 1.5	28 ± 2	4 ± 0.6
Kejimkujik	21	51 ± 2.5	44 ± 3	5 ± 0.4

Source: Hopper and Barrie, 1988

Tableau 3.2.13

Estimations de la contribution des sources à la pollution atmosphérique par le Pb à Dorset, au cours de deux saisons. On peut voir les incertitudes absolues associées à un écart type.

Station	Automne 1984	Printemps 1986
	Contribution (%)	
Canada	52 ± 3	66 ± 3
É.-U.	46 ± 3	25 ± 2
Fonderies du Nord	2 ± 3	9 ± 1

Source: Sturges and Barrie, 1989

Samson et Keeler (1987) ont mis au point une autre utilisation innovatrice des éléments traces. Dans ce cas, on n'a fait aucune hypothèse concernant l'emplacement des émissions des éléments traces et on a utilisé seulement les observations quotidiennes dans six stations de surveillance situées dans le nord-est des É.-U., pour le mois d'août 1983 ainsi que les champs de précipitations et de vent. On a calculé des rétrotrajectoires à partir de chaque station d'observation, chaque jour, et fait le point sur la dispersion et les dépôts humides et secs. On a ainsi établi les fonctions de probabilité et déterminé, pour chaque station d'observation, les régions géographiques à l'origine des concentrations dont les valeurs se situaient entre certaines limites. Par recoupement des cartes de toutes les stations, on a pu obtenir des profils clairs indiquant les régions géographiques associées aux observations recueillies dont les valeurs se situaient entre certaines limites. Par exemple, le profil du vanadium indiquait des concentrations maximales en provenance de la côte est, qui s'accordaient avec les concentrations décelées dans le mazout; pour le $SO_4^=$, la région émettrice des concentrations maximales englobait la vallée de l'Ohio.

Une analyse récente des données sur d'événements recueillies à trois endroits dans le sud de l'Ontario, combine l'analyse en composantes principales des espèces chimiques présentes dans les précipitations et l'analyse des points terminaux des trajectoires des masses d'air (Zeng et Hopke, 1989). Les résultats montrent clairement que la vallée de l'Ohio et la côte est des É.-U. constituent la principale région émettrice des substances acidifiantes.

3.2.4.e RÉPERCUSSIONS DE LA FERMETURE D'UNE SOURCE PONCTUELLE MAJEURE

Dans l'évaluation précédente (RMCC, 1986), on a examiné les efforts faits pour déterminer et quantifier les répercussions d'une fermeture prolongée de la fonderie de l'INCO Ltée à Sudbury, au début des années 1980. Bien que des baisses réelles de SO_2 dans les concentrations atmosphériques de SO_2 et dans l'ensemble des dépôts de $SO_4^=$ (humides et secs) aient pu être décelées dans la région de Sudbury, les répercussions sur la chimie des précipitations à une distance supérieure à 200 km sous le vent étaient difficiles à déceler. Cette situation est partiellement imputable à la faible probabilité qu'un panache émanant d'une seule source ponctuelle se trouve au-dessus d'une station de surveillance éloignée, lorsque survient un événement de précipitation. Ce fait, combiné aux concentrations régionales élevées des dépôts de $SO_4^=$ attribuables au transport sur de grandes distances à partir d'autres sources situées dans l'est de l'Amérique du Nord, a rendu difficile la détermination des répercussions de la fermeture de la fonderie de l'INCO.

Depuis que les études mentionnées ci-dessus ont été effectuées, il s'est présenté une occasion d'expérimentation unique, sur la côte ouest. La fermeture définitive, en mars 1985, de la grande fonderie de cuivre ASARCO de Tacoma, dans l'État de Washington, a été annoncée très en avance, ce qui a permis la création d'un réseau de surveillance

des précipitations à seule fin d'échantillonner les événements pluvio-hydrologiques avant et après la fermeture. Trois autres facteurs ont rendu la détection des répercussions de la fermeture de la fonderie plus facile : i) la fonderie produisait une grande partie des émissions de SO_2 totales de la région de Puget Sound; ii) il n'y avait pas de transport important de $SO_4^=$ sur de grandes distances vers cette même région et iii) la topographie et la météorologie de la région, avec ses événements de précipitations abondantes accompagnés la plupart du temps d'un flux sud-ouest, permettaient de classer facilement les événements de précipitations. On a conclu (Vong et al., 1988) que les concentrations de $SO_4^=$ dans l'eau de pluie de la région, située à 25 km en aval des sources émettrices, avaient baissé considérablement après la fermeture de la fonderie, mais qu'aucun changement significatif n'avait été observé plus en aval, dans la région de Seattle. Fait plus important, une moyenne de seulement 4,4 pour cent (variant pour l'ensemble des pluies importantes entre 0,7 et 8,6 pour cent) du SO_2 émis retombait en dépôts humides de $SO_4^=$ dans une région de 60 x 60 km en aval de la source, ce qui suppose que le gros du soufre est déposé sous forme de dépôts secs ou transporté sur de grandes distances sous le vent. Ce fait est corroboré par l'analyse des données recueillies par un réseau de surveillance de la chimie des précipitations exploité en C.-B., juste au nord de la frontière canado-américaine par Environnement Canada depuis 1982. Onze stations d'observation ont été exploitées, formant une chaîne à partir du côté ouest de l'île de Vancouver et sur le pourtour de la partie inférieure de l'île, à travers le détroit de Georgie jusqu'à Vancouver et en remontant la vallée du fleuve Fraser. Pour les événements de précipitations associés à des flux du sud et de sud-ouest, les plus fortes concentrations de $SO_4^=$ et d'arsenic (As), dont la seule source importante était la fonderie de l'ASARCO, ont été observées dans les stations les plus exposées à un flux provenant directement de Puget Sound (Faulkner, 1986), à des endroits situés à 150 à 230 km de la fonderie. Après la fermeture de la fonderie et dans les mêmes conditions météorologiques, les concentrations de As ont chuté pour se stabiliser à des niveaux de fond à tous les endroits. Dans la plupart des endroits où le AS a été décelé avant la fermeture, les concentrations de $SO_4^=$ ont baissé après la fermeture de 0,2 $\mu g\ l^{-1}$ en moyenne, soit d'environ 25 pour cent. Comme point de repère, on note que les moyennes relatives aux événements de précipitations, avant et après la fermeture, avec vents soufflant directement du Pacifique, n'affichaient aucun changement significatif dans les concentrations de As ou de SO_4.

3.2.4.f EXPÉRIENCE CAPTEX (Utilisation de traceurs à travers la région des Appalaches)

Plusieurs traceurs artificiels, comme le SF_8, ont été employés pendant un certain temps pour suivre la diffusion et la dispersion des panaches sur des distances allant jusqu'à 100 m. La véritable percée, en ce qui concerne les expériences de transport sur de grandes distances, lorsqu'il s'agit de distances de 1 000 m ou plus, est survenue vers la fin des années 1970 avec la mise au point de traceurs à base d'hydrocarbure perfluoré inerte. En raison des concentrations de fond extrêmement faibles de ces traceurs à l'état naturel dans l'atmosphère et des techniques analytiques de laboratoire extrêmement

sensibles, les expériences pouvaient être effectuées avec le dégagement d'une quantité de traceur de l'ordre de 100 g. Dans l'expérience CAPTEX réalisée dans la partie est de l'Amérique du Nord à l'automne 1983, sept dégagements de traceur ont eu lieu à environ une semaine d'intervalle, soit 5 à partir de Dayton, dans l'Ohio, et 2 à partir de Sudbury, en Ontario (Ferber, 1985).

Le principal objectif de CAPTEX était de vérifier l'aptitude des modèles de transport des polluants atmosphériques sur de grandes distances (TGDPA) à simuler le transport et la dispersion d'un gaz traceur inerte dans l'atmosphère. Cependant, les relevés du champ de concentration des traceurs au niveau du sol, par pas de temps de six heures au cours des deux jours qui ont suivi chaque dégagement, ont clairement révélé le mouvement du traceur à travers la partie est de l'Amérique du Nord et le fait que les quantités relâchées au niveau du sol étaient mélangées suffisamment dans la basse atmosphère pour être transportées comme un nuage gazeux cohérent sur des distances d'au moins 1 200 km.

3.2.4.g EXPÉRIENCE ANATEX (Utilisation de traceurs à travers l'Amérique du Nord)

Pour faire suite au succès remporté par CAPTEX, une expérience à plus grande échelle a été réalisée au cours des trois premiers mois de 1987 (Draxler et Hefter, Eds, 1989). Dans l'expérience, on s'est servi de trois différents types de traceur à base d'hydrocarbure perfluoré inerte qu'on a relâchés en différentes combinaisons tous les deux jours et demi (en assurant des relâchements diurnes et nocturnes en alternance), à partir de deux endroits (Glasgow, dans le Montana, et St. Cloud, au Minnesota) situés à environ 1 000 km de distance l'un de l'autre. Les échantillons d'une durée de 24 heures étaient recueillis à 77 endroits couvrant tout l'est des É.-U. et du Canada, à l'est de la longitude 104° Ouest et au sud de la latitude 54° Nord, jusqu'à une distance de 3 000 km du point d'émission. Les deux principaux objectifs d'ANATEX étaient de vérifier la capacité des modèles de TGDPA à isoler les effets de deux sources différentes sur une zone réceptrice et à caractériser l'influence des particularités météorologiques synoptiques sur le transport à l'échele continentale. Ici encore, l'étude a révélé que les émissions au niveau du sol pouvaient être suivis avec succès et identifiés à des distances allant jusqu'à 3 000 kilomètres. Les comparaisons du transport de traceurs avec les modèles de TGDPA sont abordées à la section 3.3.5.c.

3.2.4.h BILAN DU SOUFRE ATMOSPHÉRIQUE MIS À JOUR POUR L'EST DU CANADA

D'autres renseignements sur les rapports source-récepteur, à une échelle régionale globale, peuvent être obtenus par l'examen du bilans atmosphérique du soufre. Les derniers bilans détaillés du soufre pour la partie est de l'Amérique du Nord, fondés sur des observations, font usage de données qui datent du début des années 1980. Depuis lors, l'apport d'émissions anthropogènes de SO_2 a changé considérablement. Certaines des autres composantes du bilan peuvent maintenant être évaluées avec plus de

précision, à partir des observations provenant de réseaux de surveillance étendus et à partir des résultats de l'expérience WATOX concernant la partie ouest de l'océan Atlantique.

Suite aux recommandations présentées à la Conférence Internationale parrainée par le U.S. National Acid Precipitation Assessment Program (NAPAP), en février 1990, le NAPAP est à préparer un bilan du soufre pour la partie est des États-Unis (et peut-être pour la partie est de l'Amérique du Nord dans son ensemble). Pour l'instant, des estimations préliminaires des diverses composantes du bilan (flux) aux É.-U., obtenues du NAPAP (1989), seront fournies ici en attendant les résultats finals du NAPAP. La région examinée est celle qui apparaît à la figure 3.2.31 et les estimations des flux pour le Canada et les É.-U. sont résumées au tableau 3.2.14. Les sources des estimations sont indiquées sommairement dans les notes en bas de page, sous le tableau. Signalons que deux des estimations pour les É.-U. (soit pour les dépôts humides et secs) sont marquées par de fortes incertitudes imputables aux importants facteurs de correction à la hausse appliqués par le NAPAP; ces incertitudes devraient être réduites dans le rapport final du NAPAP. Ces corrections à la hausse attribuables à l'influence de grandes régions urbaines sont beaucoup moins importantes au Canada et les réseaux de surveillance ruraux fournissent de bonnes mesures représentatives de l'ensemble de la région.

On mettra donc l'accent, dans cette section, sur le Canada où certaines estimations sont plus faciles à établir. En ce qui concerne l'est du Canada, on note un écart considérable entre les émissions et les dépôts; cet écart s'expliquerait par l'influx net transfrontalier en provenance des É.-U. La meilleure estimation de 1.2 Tg/année de soufre se situe dans la gamme des valeurs estimées récemment par deux modèles lagrangiens de transport sur de grandes distances (Olson et Oikawa, 1989; Shannon et Lesht, 1986), mais diffère considérablement des résultats d'un modèle statistique de TGDPA (Fay et al., 1986), comme en fait preuve l'étude d'Olson (1989). Cette valeur de 1.2 Tg/année est légèrement inférieure à la valeur estimée par Galloway et Whelpdale (1980); elle concorde par conséquent avec le fait que l'apport par les émissions anthropogènes a baissé depuis. En dépit des incertitudes dans les données des É.-U. reproduites au tableau 3.2.14 et de l'omission de certaines données de moindre importance, un flux net en direction de l'est d'environ 1.4 Tg/année de soufre vers le Canada est nécessaire pour équilibrer le bilan des É.-U. dans l'est, bilan fondé sur les estimations les plus précises des conditions du flux. Ce flux concorde avec le flux obtenu pour le bilan canadien.

Ce bilan pour l'est du Canada montre que le flux net estimé de SO_2 transfrontalier en provenance des É.-U. a une ampleur égale à celle des émissions anthropogènes de l'est du Canada. Ceci confirme les conclusions antérieures selon lesquelles environ la moitié des dépôts de soufre sur l'est du Canada est imputable à des sources des É.-U. et l'autre moitié, à des sources canadiennes.

Tableau 3.2.14

Principaux termes liés au flux atmosphérique de l'est du Canada et des États-Unis de 1985 à 1987.

Unités: Tg S / année

Termes	Canada		ÉTATS-UNIS	
	Limites	Meilleure Estimation	Limites	Meilleure Estimation
ENTRÉE				
Émissions anthropogènes	1.1 - 1.3[1]	1.2	7.6 - 9.2	8.4
Émissions naturelles		<0.1[2]		?
Influx provenant de l'ouest	0.05 - 0.01[3]	<0.1		?
Total	1.2 - 1.4	1.3		8.4
SORTIE				
Dépôts humides[4]	1.1 - 1.3	1.2	1.7 - 2.5[5]	2.1
Dépôts secs[6]	0.2 - 0.4	0.3	1.2 - 3.4[7]	2.3
Transport vers l'océan Atlantique[8]	0.7 - 1.1	0.9	2.3 - 2.9	2.6
Dépôts par le brouillard[9]	0.0 - 0.2	0.1		?
Total	2.0 - 3.0	2.5		7.0
BALANCE - On présume que le flux net est de É.-U. vers Canada	0.6 - 1.8	1.2		

(1) Ils viennent des tableaux 3.2.1, 3.2.2, 3.2.5, avec une erreur estimative de +10%.
(2) Basé sur Galloway et Whelpdale (1980)- les émissions dans l'est du Canada ont peu changé. Les mesures (à ELA et Kenora) indiquentque la moyenne courante des concentrations annuelles de l'air est 0.5 µg S m^{-3}.
(3) Pris de Galloway et Whelpdale (1980).
(4) Intégration dans les régions du Canada et des É.-U., séparement, avec une méthode expliquée dans la section 3.2.3b.
(5) Dépôts augmentes de 25% à cause des influences urbaines comme indique NAPAP (1989).
(6) La proportion des dépôts secs aux dépôts totals est utilisée en se servant des valeurs données dans l'Annexe 3A et Summers (1990).
(7) En se servant de Summers (1990),avec une augmentation de 100% pour compenser le fait que la surveillance est rurale plutôt que dans les régions à concentrations élevées près des sources et dans les régions urbaines comme indique NAPAP (1989).
(8) Basé sur les estimations de WATOX données par Galloway et Whelpdale (1987),et reparti entre Canada et É.-U. selon le tableau 9 dans Galloway et al. (1984).
(9) Basé sur Schemenauer et al. (1988)et tout en supposant que 5 a 10% du total des régions canadiennes de l'est est soumis aux dépôts par le brouillard.
? Pas évalué par NAPAP - mais tous les termes sont considérés petits, c.-à-d. < 0.5 Tg S / année.

3.2.4.i BRUME ARCTIQUE

Le phénomène de réduction de la visibilité dans l'Arctique a été documenté pour la première fois il y a 30 ans. Mais ce n'est que vers la fin de la décennie 1970 qu'on a pu lentement en isoler les causes. À partir de la forte variation saisonnière des concentrations et de la composition chimique des matières particulaires en suspension dans l'Arctique, de même que de la variation saisonnière de la circulation météorologique à grande échelle, Rahn et Heidam (1981) ont conclu que l'apparition de la brume arctique pendant l'hiver était imputable au transport sur de grandes distances (de l'ordre de 10 000 km) de polluants en provenance des régions industrielles des latitudes moyennes de l'hémisphère nord. D'autres analyses de la climatologie des principales trajectoires de masses d'air provenant des régions industrielles émettrices, de même que la vraisemblance que des précipitations aient lieu pendant leur trajet vers l'Arctique, semblent indiquer que l'Eurasie est la région source la plus probable (Rahn, 1982). Une analyse plus détaillée de la situation synoptique à l'origine d'un fort refoulement d'air vers l'Arctique, en provenance des latitudes moyennes (Raatz et Shaw, 1984), a montré que le lien entre l'Eurasie et l'Arctique était beaucoup plus fort que celui qui existe entre l'Amérique du Nord et l'Arctique. Plus précisément, ce lien avec l'Eurasie s'exprime par une prépondérance de refoulements d'air provenant de l'Europe de l'est (région à l'ouest de l'Oural) au début de l'hiver (novembre à janvier) et de l'Europe de l'ouest à la fin de l'hiver (février à mars).

On a encore perfectionné les analyses ci-dessus, au cours des dernières années, par des calculs sur les trajectoires des masses d'air. Cependant, la question de l'exactitude des calculs de trajectoires pour les quelques jours nécessaires au déplacement des parcelles d'air de la région émettrice jusque dans l'Arctique devient actuellement un sujet de préoccupation important. Plusieurs rapports récents ont été consacrés à cette question et il semble que, dans certaines conditions météorologiques, des erreurs de position allant jusqu'à 500 km peuvent se produire après 72 heures. Une analyse consacrée spécialement aux trajectoires de transport sur de grandes distances dans l'Arctique (Kahl et al., 1989) montre des différences, pouvant aller jusqu'à 1 000 km après 5 jours, dans les points d'aboutissement des trajectoires calculés à l'aide de deux modèles différents. Ainsi, on ne peut pas recourir aux trajectoires pour distinguer les unes des autres, les sources émettrices possibles à l'origine de la brume arctique sur une échelle inférieure à 1 000 km environ. Cette méthode est tout de même utile, car elle permet de distinguer les sources d'Amérique du Nord des sources d'Eurasie et même de distinguer les sources de différentes parties du continent eurasien.

3.2.5 RÉSUMÉ ET CONCLUSION

Comme les principaux programmes de recherche sur les pluies acides en Amérique du Nord ont été amorcés vers la fin des années 1970, des efforts considérables ont été investis dans la détermination des émissions d'acides dans l'atmosphère et dans la détermination des concentrations de ces acides dans l'air et dans les précipitations, suivant les méthodes de résolution spatiale les plus perfectionnées qui soient. Au Canada, les gouvernements fédéral et provinciaux se sont donné la main pour établir le volet canadien du tableau d'ensemble de la pollution par les pluies acides en Amérique du Nord. À la fin de la décennie, nous possédons maintenant au moins 5 années d'observations avec bonne couverture spatiale et nous avons en main les meilleures estimations possibles concernant les émissions. Ces données sont passées en revue dans ce chapitre pour voir ce qu'elles révèlent des rapports source-récepteur. Ce résumé commence par présenter l'information sur les tendances spatiales et temporelles des concentrations dans les précipitations, pour montrer l'impact à grande échelle des changements survenus dans les émissions de la partie est de l'Amérique du Nord, et présente enfin des conclusions détaillées.

Conclusion générale concernant le lien global entre les émissions et les changements dans la chimie des précipitations

Les figures 3.2.17 et 3.2.19 permettent de voir le fort lien géographique existant entre les régions à densité maximale d'émissions et la répartition des plus fortes concentrations de soufre et de NO_x. Ces données, ainsi que les données de plusieurs sections précédentes peuvent maintenant être regroupées comme on le voit aux figures 3.2.42 et 3.2.43 pour résumer les modifications temporelles aux concentrations causées par les changements survenus dans les émissions. La carte centrale de la figure 3.2.42 reprend les données de la figure 3.2.22b) montrant les changements en pourcentage dans la concentration moyenne du $SO_4^=$ pondérée en fonction des précipitations, survenus entre la période 1980-1982 et la période 1985-1987. Au bas de la carte, on peut voir les changements temporels dans les émissions de SO_2 pour la partie est de l'Amérique du Nord (définie comme cette partie du Canada située à l'est de la frontière entre le Manitoba et la Saskatchewan et cette partie des É.-U. située à l'est de la vallée du Mississippi), changements indiquant une baisse de 12,5 pour cent dans les émissions, de la période 1980-1982 à la période de 1985-1987 (tableau 3.2.5). Autour de la carte centrale, on peut voir les tendances temporelles de 1979 à 1987 des concentrations moyennes hebdomadaires de $SO_4^=$ dans les précipitations, pour certaines stations d'observation (appendice 3D). La méthodologie employée pour calculer ces tendances a été abordée à la section 3.2.3a; on montre aussi les cinq stations d'observation canadiennes utilisées. On peut également voir les résultats d'une analyse semblable effectuée à partir des données de cinq stations d'observation sélectionnées des É.-U. (présentée à l'atelier du NADP sur l'analyse des tendances, Provincetown, Mass., les 26 et 27 octobre 1989). Il faut dire que, dans tous les cas, les tendances temporelles ont été corrigées pour l'influence de la hauteur des précipitations; par ailleurs, les cycles

annuels et les cycles à plus long terme (2 à 6 ans) ont été écartés. En outre, les émissions et les concentrations de $SO_4^=$ ont été ramenées à l'échelle des unités de l'année de base 1980 (sauf en ce qui concerne Algoma et Montmorency où l'année 1981 a été employée). Dans chaque station de surveillance, le changement en pourcentage de la moyenne 1985-1987, par rapport à la moyenne 1980-1982, correspond parfaitement aux isoplèthes de la carte, ce qui n'est du reste pas surprenant, car les mêmes données ont servi à leur établissement. Ce qu'il est intéressant de constater, c'est la façon différente dont chaque station réagit dans le temps aux changements qui surviennent dans les émissions. On ne s'attend pas à ce que chaque station réagisse de façon identique en raison du fait que chacune est sous l'influence de régions émettrices géographiquement différentes. Cela dit et combinant le fait que le $SO_4^=$ a une période de séjour dans l'atmosphère de plusieurs jours et qu'il peut ainsi se déplacer dans n'importe quelle direction sur une distance allant jusqu'à plusieurs milliers de kilomètres avant de rencontrer des précipitations, et le fait que les régimes météorologiques associés aux événements de précipitations diffèrent d'une saison à l'autre et d'un lieu géographique à l'autre, il faut conclure qu'il n'y a pas un rapport unitaire entre une station de surveillance en particulier et une source régionale d'émissions donnée. Par des techniques de modélisation numérique, on tente de quantifier ces rapports en établissant des matrices de transfert source-récepteur. La figure 3.2.42, fondée sur l'analyse des données seulement, montre tout de même des liens utiles et importants.

i) La tendance générale à la baisse, dans les concentrations de $SO_4^=$ des précipitations apparaissant sur la carte, est approximativement la même que pour les émissions de SO_2 sur la région et la période.

ii) Les tendances temporelles plus détaillées à plus long terme dans les concentrations de $SO_4^=$ des précipitations de stations individuelles affichent la plupart du temps des tendances à la baisse importantes du même ordre, à deux exceptions près.

iii) La première exception concerne la station de Montmorency, au Québec, où les concentrations ont augmenté considérablement de 1981 (aucune donnée n'est disponible pour 1980) à 1983-1984, pour ensuite baisser radicalement, ce qui ne peut être attribué spontanément à des émissions locales ni à des émissions éloignées.

iv) La deuxième exception concerne la station de Parsons, en Virginie-Occidentale, où aucune tendance appréciable n'a été décelée. Cependant, dans ce cas, les fortes émissions des trois États situés à l'ouest n'ont que faiblement diminué (voir la figure 3.2.7).

v) À plusieurs endroits, la tendance à la baisse dans les concentrations de $SO_4^=$ des précipitations devenait nulle ou même se renversait au cours des deux dernières années, suivant en celà le comportement des émissions.

La situation des concentrations de NO_3^- est assez différente, comme le montre la figure 3.2.43. La répartition des concentrations de NO_3^- pondérées en fonction des précipitations n'affiche que de faibles changements , c'est-à-dire un changement de moins de 10 pour cent sur la majeure partie de la région, entre la période 1980-1982 et la période 1985-1987; ceci concorde avec le changement global mineur dans les émissions de NO_x de -2,0 pour cent seulement entre les deux périodes (voir le tableau 3.2.5). Quatre des cinq stations canadiennes affichent seulement des cycles (voir la figure 3.2.30) et aucune tendance significative, comme l'indique la figure 3.2.29. Kejimkujik, situé dans le sud de la Nouvelle-Écosse, est la seule exception : la station affiche une augmentation considérable, surtout dans la dernière partie de la période examinée. Cette réaction est surprenante, car aucune des régions du sud-ouest ne montre d'augmentation du NO_x au cours de la période. Cependant, les concentrations de NO_3^- sont très sensibles à la direction du vent, à cet endroit. Une bande à densité d'émissions de NO_x extrêmement élevée se trouve le long du corridor urbain Washington-Boston; un faible changement dans la fréquence relative des directions de vent le long de ce corridor, d'une année à l'autre, pourrait avoir des effets considérables.

Il se dégage de l'analyse qui précède deux conclusions générales : i) les modifications régionales globales aux concentrations de $SO_4^=$ et de NO_3^-, mesurées dans les précipitations sur une période de 8 ans seulement, concordent avec les changements observés dans les émissions régionales de SO_2 et de NO_x au cours de la même période; et ii) la variation dans la réponse observée à chaque station de surveillance, bien que généralement conforme aux données ci-dessus, montre que le fait de se fonder sur un trop petit nombre de stations, pour la surveillance des effets sur la chimie atmosphérique suite aux modifications dans les émissions futures, rend l'interprétation difficile et pourrait mener à des résultats trompeurs.

Conclusions détaillées

1. Entre 1980 et 1985, les émissions de SO_x au Canada ont baissé de 20 pour cent. Les provinces ont réduit leurs émissions dans une mesure allant de 3 pour cent au Manitoba à 37 pour cent au Québec et au Nouveau-Brunswick. La principale province émettrice, l'Ontario, a réduit ses émissions de 17 pour cent. Pour la période au cours de laquelle le Canada a réduit ses émissions de SO_x de 20 pour cent, les É.-U. ont abaissé les leurs de 15 pour cent. Les changements enregistrés dans diverses régions ou dans certains États américaines se situaient entre +4 pour cent dans le centre du sud-ouest et -30 à -40 pour cent dans le Maine, le Pacifique ouest, le Michigan et la Floride. Les changements à l'est, dans les États adjacents à la frontière entre le Canada et les États-Unis, se situaient entre -5 pour cent environ en Illinois, Indiana et Ohio et -20 à -40 pour cent dans les autres États.

2. Entre 1980 et 1985, les émissions de NO_x au Canada ont augmenté de 14 pour cent. L'échelle de variation allait de -13 pour cent au Nouveau-Brunswick à

-18 pour cent au Québec et jusqu'à +20 à +30 pour cent dans les régions situées à l'ouest de la région de Québec. Pour leur part, les É.-U. ont enregistré une baisse dans les émissions de NO_x totales de 8 pour cent. Les changements observés dans diverses régions ou États se situaient entre +12 pour cent en Indiana et -15 à -22 pour cent dans le centre du sud-ouest, l'Ohio et le nord-est.

3. Les répartitions des concentrations atmosphériques et des dépôts humides d'éléments acides sont en rapport géographique et qualitatif étroit avec les répartitions des émissions des précurseurs du SO_2 et du NO_x. Les maximums dans les répartitions atmosphériques tendent à se situer au-dessus ou juste au-dessous des maximums de densité des émissions. Ces données ne sont pas nouvelles, mais viennent plutôt confirmer les déductions faites précédemment au cours de la décennie, fondées sur des observations moins nombreuses et moins denses.

4. La stratification des concentrations mesurées, à l'aide de trajectoires de masses d'air dans la couche superficielle de mélange remontant jusqu'à 5 jours, permet la détermination des régions émettrices que les masses d'air ont traversées, mais ne permet pas de distinguer les sources émettrices locales des sources émettrices éloignées. Cependant, si les facteurs empiriques d'atténuation des concentrations de polluants le long des trajectoires sont inclus, on peut alors discerner l'impact de régions émettrices situées à des distances variables. On peut ainsi évaluer semi-empiriquement les rapports quantitatifs source-récepteur. Ces analyses confirment à nouveau les données estimatives antérieures (tirées des observations et des modèles) selon lesquelles une grande partie (généralement égale ou supérieure à 50 pour cent) des concentrations de $SO_4^=$ dans les précipitations et dans l'air, observées dans les stations canadiennes de l'est situées à proximité de la frontière canado-américaine, est imputable aux sources d'émissions des É.-U. Il en est de même du NO_3^-.

5. On peut recourir à la modélisation relative aux zones réceptrices (en se servant du fait que les aérosols atmosphériques contiennent de nombreux éléments traces de sources connues) et aux ratios de concentration, dans certains processus naturels ou de combustion, pour distinguer les unes des autres les grandes régions émettrices responsables des concentrations observées dans à une station de surveillance donnée. Par exemple, en se servant des rapports isotopiques connus et uniques du Pb, utilisé dans l'essence au Canada et aux É.-U. et dans le traitement du minerai dans les fonderies canadiennes, et en combinant les observations faites dans les stations de surveillance à l'analyse des trajectoires des masses d'air, il est possible de répartir, entre diverses régions émettrices, le Pb relevé dans l'air à quelques stations de surveillance en milieu rural de l'est du Canada. C'est ainsi qu'on peut suivre le transport des émissions sur de grandes distances, les émissions des fonderies du centre de l'Ontario et de l'ouest du Québec étant décelées en Nouvelle-Écosse. En outre, le Pb des émissions des

véhicules automobiles des É.-U. représente entre le quart et la moitié du Pb relevé dans l'air aux stations d'observation canadiennes.

6. Les expériences réalisées au moyen de relâchements contrôlés (dans l'espace et dans le temps) de traceurs artificiels inertes (les perfluorocarbures, par exemple) ont clairement démontré la réalité du transport sur de grandes distances jusqu'à 3 000 kilomètres du lieu d'émission. Ces expériences ne peuvent servir à établir des rapports source-récepteur pour les polluants acides réactifs, mais elles sont utiles dans l'établissement des incertitudes associées au calcul des trajectoires des masses d'air à partir des champs météorologiques de vent.

7. Les tendances dans les concentrations des composés acides engendrées par des changements dans les émissions de l'ordre de -18 à -30 pour cent sont difficiles à interpréter à l'aide d'un relevé des observations faites sur une période de 5 à 9 ans à cause de la variabilité météorologique et des changements qui surviennent dans les méthodes de mesure. L'analyse statistique a révélé qu'il fallait non seulement tenir compte des variations saisonnières et des tendances à long terme dans un modèle adapté aux données, mais qu'il fallait également tenir compte des variations sur une échelle temporelle supérieure à un an mais inférieure à la période d'enregistrement des données. Malgré les difficultés, on a observé des changements intéressants.

8. Dans l'est du Canada, des baisses statistiquement significatives du SO_2 atmosphérique (le principal composé acide de soufre dans l'air) ont été relevées entre 1980 et 1985 à Kenora-ELA, Chalk River, à Montmorency et à Kejimkujik (figure 3.2.30a). Tous ces endroits se trouvent dans ou en aval de régions dans lesquelles les émissions de SO_x ont enregistré une baisse de plus de 10 pour cent. Algoma, près de Sault-Sainte-Marie, fait exception : aucun changement dans le SO_2 n'y était apparent. Cette situation s'explique par le fait qu'une région émettrice majeure est située en amont de cet endroit; c'est la région de l'Illinois où a été noté un changement dans les émissions de -4,5 pour cent seulement. Ces résultats concordent également avec la déduction selon laquelle le soufre atmosphérique total à Dorset, en Ontario (la station la plus près de Chalk River) a baissé entre 1981 et 1986.

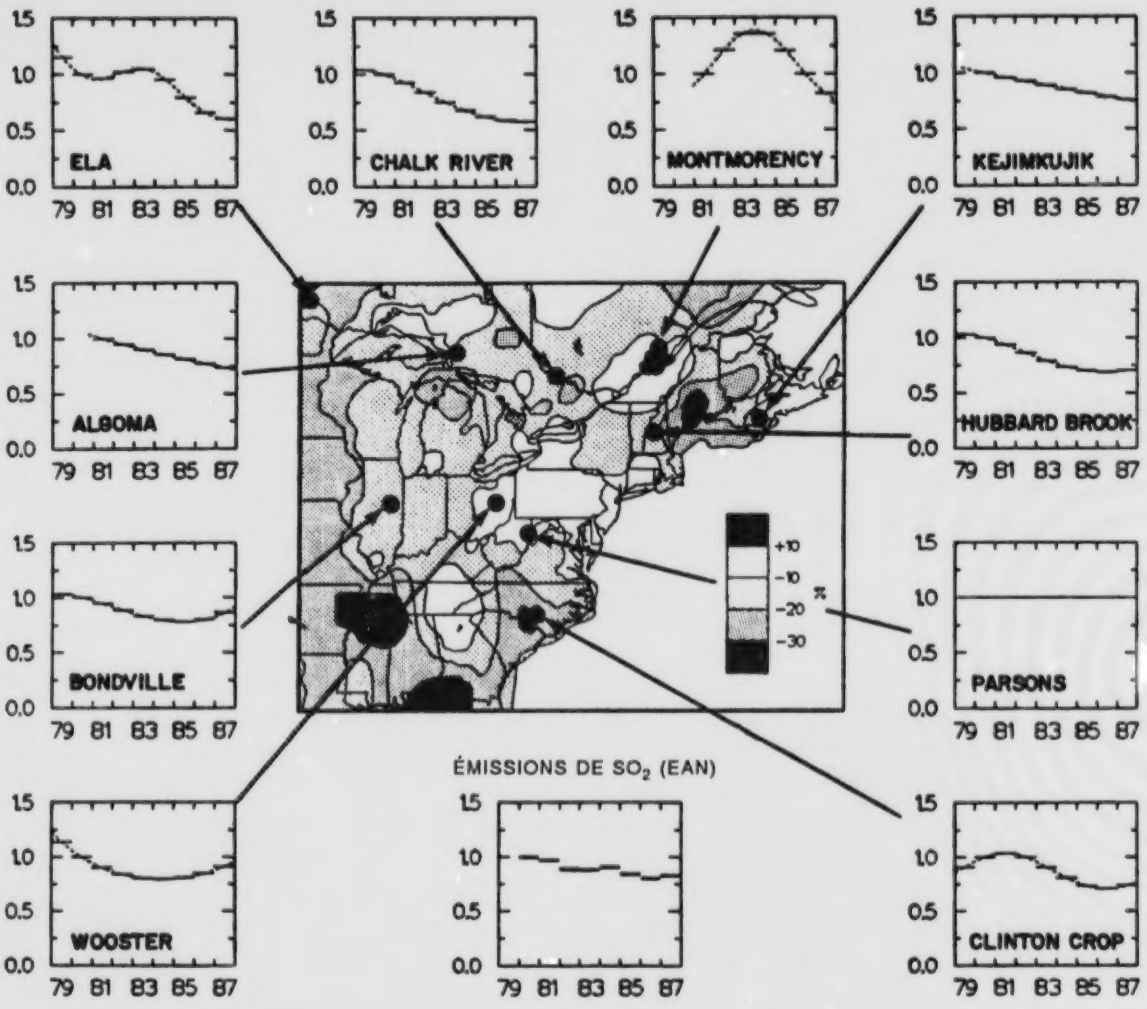
9. Une analyse du changement survenu dans les concentrations atmosphériques de SO_2 entre 1982 et 1987 à Kenora-ELA et Kejimkujik (Nouvelle-Écosse), en fonction du secteur relatif aux trajectoires des parcelles d'air, a mené aux résultats suivants. Dans la ELA, une baisse par un facteur relativement uniforme de 3 à 4 a été enregistrée, peu importe l'origine des parcelles d'air. À Kejimkujik, la baisse a varié d'un facteur de 10, dans le secteur relativement exempt de pollution qui donne sur l'Atlantique, sur l'est de la Nouvelle-Écosse, jusqu'à un facteur de 2 aux abords du secteur continental relativement pollué du sud-ouest. Ces baisses dans les concentrations sont plus importantes que ce à quoi l'on pouvait s'attendre d'un

rapport linéaire simple entre les émissions et les concentrations atmosphériques sous le vent des régions émettrices. Cependant, la variabilité météorologique ne peut être négligée en tant que facteur responsable, même si une analyse de secteur a été effectuée pour tenter d'en réduire l'importance.

10. La concentration de NO_3^- total dans l'air ou dans les précipitations n'a pas diminué ni augmenté sensiblement, dans 5 stations d'observation en milieu rural, de l'est du Canada, entre 1979 et 1987, ni à Dorset (Ontario) entre 1981 et 1986. Cependant, on a noté des variations statistiquement significatives à plusieurs endroits. La cause de ces variations est probablement d'ordre météorologique. Le fait qu'il y a peu ou pas de changement dans le NO_3^- n'est pas surprenant compte tenu de l'ampleur et de la complexité des changements dans les émissions survenus au cours des premières années de la décennie 1980. Ces émissions ont augmenté au Canada. Aux États-Unis, cependant, des zones de fluctuations à la hausse ou à l'échelle régionale ont été observés.

11. Entre 1981 et 1987, la concentration de $SO_4^=$ dans les précipitations, ajustée pour tenir compte de la dépendance par rapport à la hauteur des précipitations, a varié considérablement dans les cinq stations d'observation de l'est du Canada. À l'exception de Montmorency, toutes les stations ont affiché une baisse nette au cours de cette période, baisse se situant entre 18 et 40 pour cent (figure 3.2.29a). Les changements survenus concordaient avec le profil global des changements notés dans l'est de l'Amérique du Nord entre le début et la fin des années 1980 (figure 3.2.42).

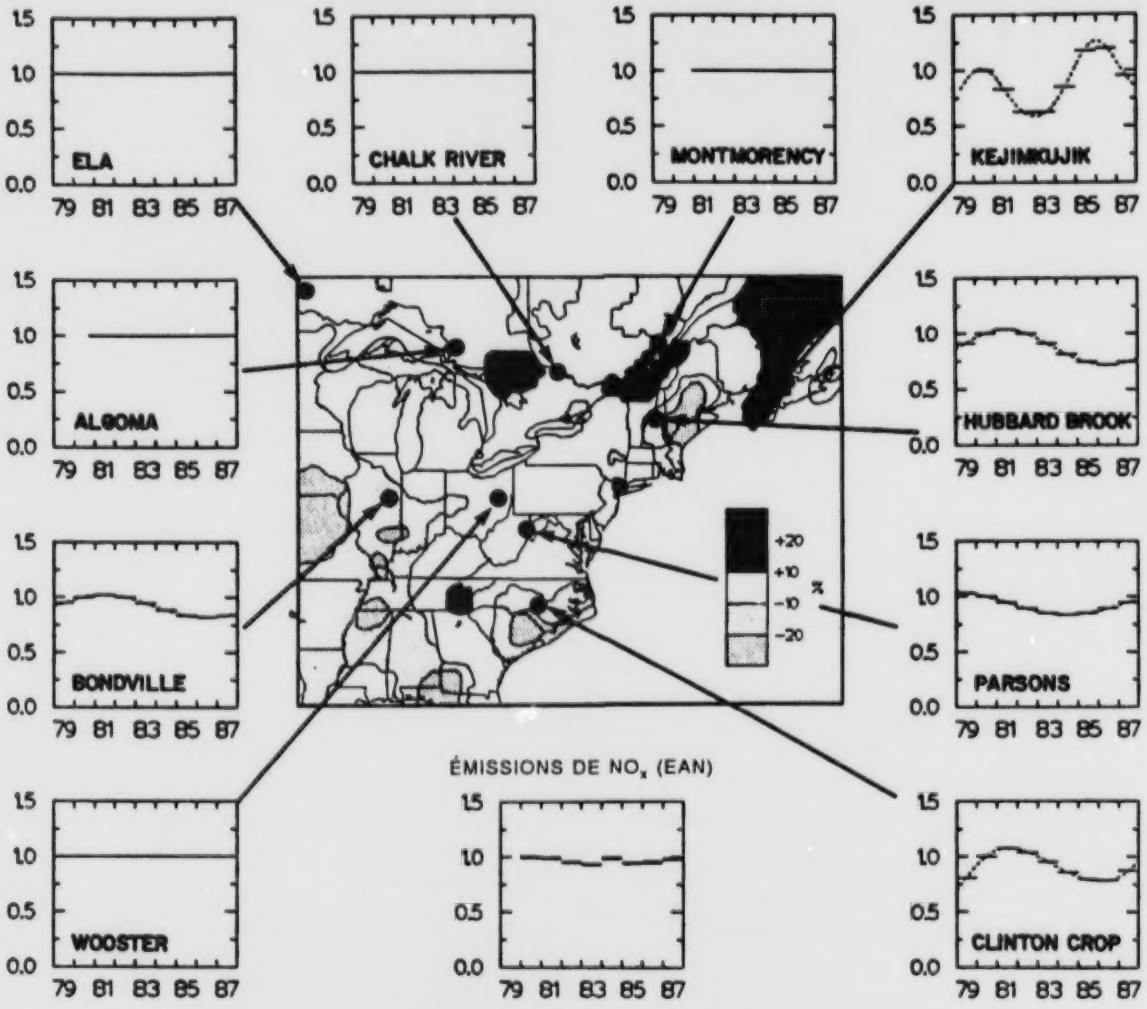
12. On ne constate aucune tendance significative dans les concentrations atmosphériques de l'ozone au niveau du sol dans le sud de l'Ontario, entre 1979 et 1988, ce qui concorde avec les changements de faible envergure seulement observés dans les émissions de NO_x, au cours de cette période, au Canada et dans les États du nord des États-Unis.



DIFFÉRENCE EN POUR CENT DE LA MOYENNE DE 3 ANS (1980-82, 1985-87) DES CONCENTRATIONS DE $SO_4^=$ EN EXCÈS

EAN: L'Est de l'Amérique du Nord

Figure 3.2.42 Tendances des émissions de SO_2 et des concentrations de sulfates en excès dans les précipitations dans l'est de l'Amérique du Nord. Les différentes zones ombrées de la carte montrent les pourcentages de différence entre les champs des concentrations moyennes au cours de 1980 à 1982 et de 1985 à 1987. L'encadré situé immédiatement sous la carte montre les changements dans les émissions de SO_2 dans l'est de l'Amérique du Nord normalisées en fonction de 1980. Les encadrés extérieurs présentent les valeurs observées d'année en année, normalisées en fonction de 1980, à un certain nombre d'emplacements particuliers.



DIFFÉRENCE EN POUR CENT DE LA MOYENNE DE 3 ANS (1980-82, 1985-87) DES CONCENTRATIONS DE NO_3^-

EAN: L'Est de l'Amérique du Nord

Figure 3.2.43 Tendances des émissions de NO_x et des concentrations de nitrates dans les précipitations dans l'est de l'Amérique du Nord. Les différentes zones ombrées de la carte montrent les pourcentages de différence entre les champs des concentrations moyennes au cours de 1980 à 1982 et de 1985 à 1987. L'encadré situé immédiatement sous la carte montre les changements dans les émissions de SO_2 dans l'est de l'Amérique du Nord normalisées en fonction de 1980. Les encadrés extérieurs présentent les valeurs observées d'année en année, normalisées en fonction de 1980, à un certain nombre d'emplacements particuliers.

3.3 RELATIONS ENTRE LA SOURCE ET LE RÉCEPTEUR ÉTABLIES À L'AIDE DES MODÈLES NUMÉRIQUES

3.3.1 INTRODUCTION

Les relations entre la source et le récepteur sont définies dans le présent document comme l'effet d'une source, d'un groupe de sources ou d'une zone source sur la qualité de l'air et l'écosystème de tout emplacement géographique nommé récepteur. On entend par source un point ou une zone d'émission de polluants atmosphériques primaires. Son effet sur le récepteur peut être dû aux répercussions des polluants primaires ainsi qu'à celles de polluants secondaires qui résultent de réactions chimiques dans l'atmosphère.

L'ampleur des incidences sur le récepteur dépend de la vulnérabilité de ce dernier aux polluants et de la quantité de polluants reçus. Les polluants atteignent le récepteur par diverses voies. Nous nous intéressons ici aux voies atmosphériques, c'est-à-dire le transport des polluants par le vent, leur transformation chimique et les dépôts qui se produisent en cours de route ainsi qu'à la façon dont ces polluants sont déposés à l'emplacement du récepteur.

Pour un système linéaire, la relation mathématique entre la source et le récepteur se définit comme suit :

$$D_j = \Sigma\ S_i \,.\, X_{ij} + B_j \qquad (1)$$

où la sommation se fait sur des indices répétés, et D_j représente les dépôts ou la concentration de polluants au J^e récepteur dus à la i^e source ou zone source (S_i). Le membre X_{ij} représente la "fonction de transfert" (parfois appelée matrice de transfert) qui relie la i^e source au j^e récepteur. Dans un système linéaire, X_{ij} est indépendant de S_i; toutefois il est en général fonction de S_i, et, dans ce cas, une simple relation linéaire est inappropriée. Puisque les sources sont habituellement de nature anthropique, le facteur B_j, représentant les dépôts de fond, tient compte des dépôts d'origine naturelle ainsi que des sources situées à l'extérieur du domaine étudié. Les dépôts de fond sont relativement faibles dans les régions où l'ensemble des dépôts est élevé, mais ils dominent dans les régions éloignées. Ils sont habituellement le produit d'une concentration de fond constante dans les précipitations par la quantité de précipitations à l'emplacement (j) (ex. : Eliassen, 1980; Barrie et Hales, 1984).

Au cours des premiers stades d'élaboration des modèles servant à simuler les problèmes de transport à grande distance, on a supposé une relation linéaire entre D_j et S_i pour les composés du soufre, soit que X_{ij} était indépendant de S_i. Des modèles mathématiques ont ensuite été mis au point selon cette hypothèse en vue de déterminer les valeurs de X_{ij} à diverses échelles de temps. Eliassen (1980), Shannon (1981), Venkatram et al.

(1982), Fay et Rosenzweig (1980), Ellenton et al. (1985) et Voldner et al. (1981) ont été parmi les premiers à élaborer des modèles.

Les divers paramètres utilisés dans la plupart de ces modèles étaient généralement dérivés de la meilleure représentation possible des champs de dépôts de SO_4^{2-} et décrivaient ainsi la situation des émissions courantes ainsi que la chimie atmosphérique connexe. Par conséquent, même si ces modèles étaient bien capables de reproduire les configurations saisonnières, annuelles et souvent mensuelles et hebdomadaires des dépôts, cette capacité a été qualifiée de fortuite, car les paramètres étaient dérivés de données observées, et les émissions n'avaient pas changé de façon importante au cours de leur période d'évaluation. Cela signifie que ces modèles ne pourraient peut-être pas être utilisés dans une situation où les émissions sont réduites de beaucoup, car leurs paramètres ne s'y appliqueraient peut-être pas. Il faut se rappeler que le principal but de l'établissement des relations source-récepteur est de déterminer, en se servant en outre de modèles économiques, la façon la plus rentable de mettre en place des moyens pour réduire les émissions ainsi que les dépôts de polluants primaires et secondaires.

Nous pouvons mieux comprendre cette critique des modèles linéaires en considérant les mécanismes par lesquels le polluant primaire SO_2 peut influer sur un récepteur par sa transformation chimique en $SO_4^{=}$, et, en présence de nuages qui produisent des précipitations, en pluies acides. Le SO_2 peut se transformer en aérosols de $SO_4^{=}$ surtout par réaction avec les radicaux $OH^{\cdot}$ en phase gazeuse. Des études réalisées par Calvert et Stockwell (1984) ont montré que cette réaction chimique ne met pas fin à une chaîne. C'est-à-dire que les radicaux $OH^{\cdot}$ ne sont pas éliminés par cette réaction, car il s'en forme d'autres au cours du processus. On peut donc s'attendre à ce que cette voie chimique soit à peu près linéaire. En effet, certains modèles plus poussés, notamment le modèle ADOM (Acid Deposition and Oxidants) ou RADM (Regional Acid Deposition) corroborent cette hypothèse.

Le SO_2 peut aussi se transformer en $SO_4^{=}$ en phase aqueuse (dans les nuages propices et non propices aux précipitations). Le principal mécanisme de cette réaction est la réaction de S(IV) avec H_2O_2 en phase aqueuse, qui se traduit par la formation de SO_4^{2-} (Schwartz, 1984; Seinfeld, 1980). H_2O_2 se dissout facilement dans l'eau. Par conséquent, la transformation en phase aqueuse du SO_2 atmosphérique en SO_4^{2-} dépend de la quantité de H_2O_2 présent (Schwartz et Daum, 1988), laquelle dépend à son tour de la photochimie d'autres composés se trouvant dans l'atmosphère comme les NO_x, les hydrocarbures réactifs (HCR), etc. Ceci fait entrer en ligne de compte un facteur non linéaire dans la relation entre D_j et S_i en raison de la quantité limitée de H_2O_2 dans certaines circonstances. La réaction de S(IV) avec O_3 peut également constituer un processus important de formation de SO_4^{2-}. Cette voie de formation, fonction du pH, est également non linéaire.

Outre les arguments susmentionnés, des études sur les nuages indiquent que le transport des polluants peut subir un effet important dû aux mouvements verticaux à l'intérieur des

nuages (ex. : Isaac et al., 1983; Banic et al., 1986; Ching et Alkezweeny, 1986; Dickerson et al., 1987). Il a donc été avancé que seul un modèle tridimensionnel comportant un domaine vertical d'au moins 10 km et tenant compte des particularités de la photochimie atmosphérique et des processus liés aux nuages pourrait établir de façon fiable la relation source-récepteur. Étant donné qu'il est moins fondé sur les paramètres, un modèle détaillé de ce genre pourrait aussi servir à simuler des scénarios comportant des changements importants dans les émissions.

On s'attend à ce que le degré de réponse non linéaire des champs de dépôts par rapport aux termes sources soit fonction du temps et de l'espace ainsi que du fait que les dépôts humides seulement ou que le total des dépôts humides et des dépôts secs sont considérés. Par exemple, pour une longue période de calcul des moyennes et pour des dépôts moyens observés dans une plus grande superficie géographique (à l'échelle d'un continent, par exemple), on s'attend à ce que la relation entre l'ensemble des dépôts et les émissions soit linéaire (rapport de la National Academy of Sciences, 1983). Cette hypothèse peut être soutenue principalement du point de vue de la conservation de la masse.

Par contre, si l'on s'intéresse à la variabilité des dépôts à l'échelle d'un État ou d'une province, on ne peut pas toujours s'attendre à des relations linéaires de ce genre. Certains ont exprimé l'opinion selon laquelle, même à cette échelle, les valeurs des dépôts annuels peuvent avoir une relation linéaire avec les émissions. Toutefois, les dépôts acides humides ont un caractère très épisodique (Smith, 1981). Autrement dit, une fraction importante du total des dépôts annuels se produit au cours de quelques précipitations. S'il est impossible de supposer une relation linéaire pour une échelle de temps épisodique, il est alors permis de douter que les dépôts annuels se comporteront de façon linéaire.

Le caractère non linéaire est fonction de la disponibilité de H_2O_2 et de O_3 pour la transformation de SO_2 en SO_4^{2-} en phase aqueuse. Par conséquent, il faut s'attendre à retrouver ce comportement non linéaire partout au cours d'un épisode (Fung et al., 1989).

Cela a conduit à la mise au point de plusieurs modèles eulériens tridimensionnels (Venkatram et al., 1988; ERT 1984, 1985; Chang et al., 1987; Lamb, 1982, 1983, 1985; Carmichael et Peters, 1984). Le modèle des dépôts acides et des oxydants (ADOM) et le modèle des dépôts acides à l'échelle régionale (RADM), qui font partie des quatre premières références, sont d'une conception plus détaillée que les autres.

Dans la présente section, nous passerons en revue les résultats des modèles linéaires mis au point jusqu'à présent et nous les comparerons avec ceux des modèles tridimensionnels plus complexes. Nous montrerons que les modèles linéaires prévoient une correspondance univoque entre les dépôts (ou la concentration) au récepteur et les émissions à la source tandis que les modèles non linéaires montrent qu'une réduction des émissions correspond à une réduction plus faible des dépôts (des concentrations)

à l'endroit du récepteur[1]. Toutefois, la tendance est la même, c'est-à-dire qu'on observe toujours une réduction des dépôts lorsqu'il y a réduction des émissions.

Il en découle que le degré de réduction des émissions devra être plus grand que les modèles linéaires le prévoient. Des scientifiques évaluent actuellement ces modèles complexes à l'aide d'un grand ensemble de données afin de déterminer avec plus de précision les différences par rapport aux prévisions des modèles linéaires. Il est à noter que l'on s'est servi des résultats des modèles linéaires (ex. : Ellenton et al., 1985; Voldner et al., 1981) pour déterminer les réductions des émissions exigées au Canada d'ici 1994. D'après des évaluations préliminaires, pour les composés du soufre, le degré de non-linéarité de l'ensemble des dépôts tombe dans la limite de précision des résultats des modèles et des données observées. Il semble donc que les modèles linéaires, bien que déficients du point de vue scientifique, peuvent être utilisés comme outil technique d'étude de la relation entre la source et le récepteur dans le cas du total des dépôts (secs plus humides) de soufre.

Le présent chapitre a trait à l'examen des divers modèles mathématiques et de leur utilisation en vue de définir la relation entre la source et le récepteur.

3.3.2 PRINCIPAUX POINTS À CONSIDÉRER DANS LA MODÉLISATION DES RELATIONS SOURCE-RÉCEPTEUR

Il n'est possible d'obtenir de l'information détaillée sur les relations entre les sources d'émissions et des récepteurs particuliers ainsi que sur les changements dans ces relations qu'à l'aide de modèles mathématiques. Ces modèles tentent de relier tous les facteurs qui entrent dans la description de ces relations. Puisque d'autres sous-comités du CCRS décriront dans leurs évaluations respectives les effets aquatiques, terrestres et autres (sur la santé, l'aspect socio-économique, etc.), nous limiterons notre discussion à la composante atmosphérique de ces relations. Cette composante nécessite de l'information sur les sources d'émissions pertinentes et sur le transport des polluants dans l'atmosphère, une description des processus physiques qui régissent le mouvement des matières à l'intérieur des nuages ainsi que des nuages vers l'extérieur, sur la transformation des polluants primaires par des processus chimiques et finalement sur le mécanisme d'élimination des polluants par dépôts humides et secs. Outre ces facteurs, les modèles mathématiques eux-mêmes requièrent des algorithmes numériques pour résoudre des équations de conservation; il faut des méthodes d'analyse pour préparer les données météorologiques, géophysiques et chimiques d'entrée et de sortie ainsi que des ordinateurs dont la vitesse et la capacité mémoire sont suffisantes pour résoudre les problèmes selon une échelle de temps appropriée.

---

[1] Ceci est particulièrement vrai pour les dépôts humides de soufre. Le total des dépôts (secs plus humides) se comporte de façon approximativement linéaire.

La capacité d'un modèle de simuler les relations source-récepteur pour différents temps de calcul dépend donc :

1) du degré de précision et d'exactitude des mécanismes considérés dans les composantes du modèle traitant du transport, de la chimie et du lessivage;

2) de la résolution spatiale et temporelle ainsi que de l'exactitude des données d'entrée en matière de météorologie, de géophysique et d'émissions.

Voici une brève discussion de ces considérations.

3.3.2.a ÉLABORATION DES MODÈLES

Transport et diffusion :

Les modèles atmosphériques font appel à de nombreuses méthodes pour simuler le transport et la diffusion. Les modèles statistiques utilisent soit une direction moyenne du vent comprenant des écarts types liés aux panaches, lesquels reflètent les fluctuations horizontales à une échelle synoptique, soit des classes de fréquences des directions. Ces modèles ne peuvent servir qu'à simuler les relations à long terme entre la source et le récepteur, car ils ne représentent qu'une météorologie "moyenne" à grande échelle.

Les modèles lagrangiens, plus complexes, calculent des trajectoires soit à partir des sources d'émissions ou des emplacements récepteurs (ex. : Summers et Olson, 1985; Kahl et al., 1989; Pudykiewicz 1988; Walmsley et Mailhot, 1983; Haagenson et al., 1987). Ces trajectoires sont calculées à partir de données sur les vents analysées ou observées sur des surfaces isobariques ou isentropes, ou les modèles utilisent les mouvements verticaux pour produire des champs de vent tridimensionnels. Il existe différents algorithmes pour le calcul des points finals des trajectoires, mais la plupart des modèles se servent d'une méthode qui fait appel à une accélération constante et qui exige la résolution itérative d'équations de trajectoires. D'après les résultats obtenus au cours d'études théoriques et d'émissions de traceurs (CAPTEX, Chernobyl, etc.), les trajectoires qui se trouvent au centre de la couche limite (950 à 925 mb) constituent une représentation convenable du transport des polluants.

La plupart des modèles lagrangiens exécutent des simulations pour une seule couche; il est possible que ce manque de résolution verticale ainsi que les effets du cisaillement du vent influent sur les relations source-récepteur. Les matières mélangées par diffusion aux hautes altitudes, par un agent de transport à grande échelle ou par le mélange des nuages peuvent se déplacer sur de longues distances avant d'être déposées ou piégées. Malgré cette lacune, les modèles lagrangiens ont très bien réussi à simuler les configurations des concentrations et des dépôts des composés du soufre en Europe et en Amérique du Nord.

Bien que ces modèles emploient fréquemment un élargissement du panache ou de la bouffée qui soit fonction de la distance dans la direction du vent, il leur faut analyser un certain nombre de trajectoires avant de pouvoir produire un champ de dépôts fiable du point de vue statistique. Normalement, on se sert de ces modèles pour simuler les dépôts mensuels, saisonniers ou annuels moyens. L'élaboration d'un modèle eulérien permet de calculer le transport des polluants à de nombreux niveaux verticaux à l'aide de l'advection en direction ou en provenance de chaque maille de la grille. Ces modèles tiennent donc compte directement de la résolution verticale et des questions de cisaillement vertical du vent. La diffusion des polluants est habituellement exprimée en terme de diffusion tourbillonnaire tridimensionnelle (K) avec des valeurs calculées en fonction de l'espace et du temps. Outre la diffusion réelle, ces modèles tiennent compte d'une diffusion artificielle ou numérique qui est le résultat d'une approximation du processus de diffusion continu obtenue à l'aide d'un processus discret appliqué à une grille. En vue de réduire au minimum les effets qui pourraient changer les relations source-récepteur, les modèles eulériens emploient des algorithmes numériques complexes pour l'advection et la diffusion. Selon la résolution du modèle et l'exactitude des données météorologiques, cette élaboration offre la possibilité de modéliser les dépôts épisodiques.

Un autre mécanisme physique qui peut influer sur les dépôts en changeant les propriétés du transport est le mélange vertical des polluants dû aux nuages. Si ce mécanisme n'était pas inclus dans le modèle, les configurations des dépôts pourraient être faussées en aval d'une source dans la direction du vent.

Élaboration de la composante chimique :

Les processus chimiques peuvent avoir un effet important sur les configurations des dépôts secs et humides loin des régions sources. Par conséquent, ils influent sur les relations source-récepteur.

Pour la modélisation des processus chimiques, on s'est servi de méthodes allant de celles qui considèrent de simples réactions linéaires entre les composés (ex. : Fisher, 1978; Ellenton et al., 1985) à celles qui tiennent compte d'ensembles complexes d'équations à résoudre pour les réactions en phase gazeuse et aqueuse (ex. : Venkatram et al., 1988; Chang et al., 1987). La chimie du soufre est peut-être la mieux connue, et de nombreux modèles statistiques et lagrangiens la traitent comme une transformation linéaire du SO_2 en SO_4^{2-}. Les taux de transformation choisis ainsi que toute dépendance saisonnière de ces taux influeraient sur les taux des dépôts secs et de lessivage des matières et donc sur les relations entre les sources et les récepteurs. Les modèles de Lagrange peuvent simuler très bien les configurations des dépôts courants parce que leurs paramètres, notamment les taux de transformation chimique, peuvent être étalonnés selon les conditions présentes.

Plusieurs modèles lagrangiens tiennent compte de mécanismes chimiques plus complexes liés aux oxydants et au soufre (ex. : Eliassen et al., 1982) bien qu'ils aient de la difficulté à tenir compte de ces processus dans des régions à sources multiples. Un modèle eulérien permet d'inclure des processus chimiques complexes en phase gazeuse et aqueuse. La prochaine section du présent chapitre traite des questions de non-linéarité dans la modélisation des relations source-récepteur. La possibilité que les mécanismes chimiques et les taux de transformation ne soient pas linéaires pour différentes conditions météorologiques importe dans les relations source-récepteur. Un traitement plus détaillé de ces processus devrait se traduire par un meilleur rendement des modèles en autant que les élaborations soient suffisamment complètes et que les vitesses de réaction soient connues avec précision.

Dépôts secs et humides :

La plupart des modèles statistiques et lagrangiens utilisent des concepts simples pour ce qui est des taux de lessivage des dépôts humides des composés du soufre (SO_2 et du $SO_4^=$)(Venkatram et al., 1982; Ellenton et al., 1985; Voldner et al., 1981; Shannon, 1981). Puisque ces modèles simples ne tiennent compte que d'une seule couche verticale, ils supposent habituellement que le lessivage a lieu sur toute la profondeur de la maille de la grille.

Dans les modèles statistiques et lagrangiens comme ceux mentionnés ci-dessus, les dépôts secs sont obtenus à l'aide d'une vitesse de dépôt qui peut varier en fonction du temps de l'année ou des caractéristiques des surfaces, selon la complexité des modèles. En ce qui concerne les relations source-récepteur, la précision de ces paramètres a un effet sur les résultats. Il est parfois possible d'étalonner les modèles selon les conditions courantes en variant les paramètres utilisés pour les taux des dépôts secs et de lessivage.

Certains modèles eulériens comprennent des modules fondés sur la physique des nuages qui tiennent compte de principes proprement physiques pour la simulation du lessivage (Venkatram et al., 1988; Chang et al., 1987). De plus, celui-ci est éventuellement restreint à la portion de la masse atmosphérique où il y a des nuages ou des précipitations. Puisque les modèles eulériens peuvent facilement tenir compte de l'utilisation des terres, du facteur de rugosité des surfaces ainsi que de la stabilité atmosphérique à l'échelle horaire, ils permettent de formuler des vitesses de dépôts secs plus détaillées et davantage fondées sur la physique que les modèles statistiques ou lagrangiens. La précision de paramètres tels le facteur de résistance de la surface réceptrice influe sur la vitesse de dépôt des matières et, par conséquent, sur les relations source-récepteur. Certains indices laissent croire que les dépôts directs par adhérence de gouttelettes de brouillard ou de nuage sur une surface peuvent jouer un rôle important dans certaines régions (notamment les régions située en haute altitude, voir section 3.2.2.b). Ce phénomène n'a été considéré par aucun modèle jusqu'à présent.

3.3.2.b DONNÉES D'ENTRÉE

Le degré de résolution et la précision des paramètres d'entrée d'un modèle de transport à grande distance peuvent avoir un effet sur les valeurs absolues des dépôts et les relations source-récepteur pour certains temps de calcul des moyennes.

Données sur les émissions :

Les erreurs dans le total des émissions d'un type de composés ou dans la distribution de ces émissions peuvent influer sur la valeur absolue ou la configuration des dépôts. Cependant, les changements dans les pourcentages des dépôts pourraient encore être relativement bien modélisés si le système était linéaire. En ce qui a trait aux relations source-récepteur ou aux comparaisons avec les configurations des dépôts à long terme, les erreurs inhérentes à l'attribution d'un niveau vertical auquel les matières sont injectées peuvent avoir un certain effet. La plupart des modèles statistiques et lagrangiens attribuent toutes les émissions à un seul niveau vertical. Pour ce qui est des modèles eulériens exhaustifs, qui utilisent comme données d'entrée des émissions de nombreux composés (SO_2, NO_x, HCR, NH_3, etc.), les erreurs systématiques commises dans le calcul du total des émissions peuvent biaiser les résultats du modèle et par conséquent influer sur les relations source-récepteur. Par exemple, l'omission des HCR d'origine naturelle dans l'inventaire des émissions modifierait la concentration des oxydants dans le modèle et aurait un effet sur la transformation du SO_2 en SO_4^{2-}. Heisler et al. (1986) ont comparé les inventaires des émissions utilisés par les participants au NAPAP et par l'EPRI afin d'en évaluer les erreurs possibles. L'inventaire du NH_3 était très différent dans les deux ensembles de données (les émissions de NH_3 utilisées par l'EPRI étaient d'environ sept fois supérieures aux émissions utilisées dans le NAPAP). Le NH_3 neutralise l'acidité et agit donc sur la transformation du SO_2 en phase aqueuse. En outre, il détermine la séparation des matières particulaires dans le NO_3^- gazeux et donc les dépôts secs de NO_3^-.

Données géophysiques :

Plusieurs processus considérés dans la modélisation du transport à grande distance sont touchés par les données géophysiques. Les modèles simples qui ne comprennent pas d'information détaillée sur les caractéristiques des surfaces ne pourraient pas résoudre un facteur comme la réduction ou l'augmentation des dépôts secs sur les surfaces aquatiques. Par contre, les modèles eulériens plus complets qui utilisent des données géophysiques plus détaillées permettent de tenir compte de ces effets. Toutefois, la précision et la résolution de ces données peut toujours influer sur les dépôts calculés à une échelle épisodique par ces modèles. Par exemple, si l'on tenait compte d'une limite de la neige au sol obtenue à partir de données climatologiques, les dépôts secs et les vitesses de mélange dépendraient de l'emplacement de cette limite. Dans le cas d'une évaluation épisodique, une limite climatologique moyenne de la neige au sol pourrait ne pas refléter les conditions existantes au cours de la période considérée.

Données météorologiques :

La précision et la résolution des données météorologiques ont un effet important sur l'échelle de temps pour laquelle les dépôts modélisés peuvent être fiables. Les modèles statistiques qui ne comprennent pas de données météorologiques réelles sont par le fait même limités à la seule prévision à long terme des champs moyens des dépôts et des concentrations. Des études réalisées à l'aide de modèles lagrangiens ont montré que la variabilité des données météorologiques d'un mois à l'autre ou d'une année à l'autre peut influer beaucoup sur les configurations des dépôts et peut être la principale cause des variations observées dans les dépôts à certains emplacements (Ellenton et al., 1985, 1988; Fernau et Samson, 1986).

Le champ des précipitations représente le facteur le plus important dans la modélisation des dépôts. Les modèles les plus simples considèrent les précipitations comme étant fonction de la durée des périodes d'averse et des périodes sèches obtenues à partir de données climatologiques. Les modèles lagrangiens utilisent habituellement des données analysées sur les précipitations enregistrées à l'intérieur de superficies terrestres. Lorsque ces modèles se servent de précipitations moyennes calculées sur 24 heures et réparties dans des grilles sans tenir compte des heures sans précipitations, ils peuvent surestimer les dépôts près de la source, car le rapport de lavage utilisé prévoit un lessivage efficace du $SO_4^=$ même dans le cas de faibles précipitations. Le manque de données sur les précipitations en mer influe également sur les résultats dans les régions côtières.

Les modèles eulériens exhaustifs utilisent soit la modélisation numérique de champs de nuages et de précipitations, soit des champs observés ou une combinaison de données observées et de champs diagnostiques obtenus à l'aide de modèles de prévisions météorologiques (Venkatram et al., 1988; Chang et al., 1987).

L'utilisation de modèles dynamiques pour estimer les champs des nuages et des précipitations permet de séparer ces champs en composantes à grande échelle et en composantes de convection. Le modèle ADOM emploie ce genre de champs diagnostiques comme données de première estimation; ces données sont ensuite modifiées à partir de données sur les nuages et sur les précipitations observées sur le terrain. Ces données détaillées permettent de modéliser les dépôts au cours de courts épisodes. Cependant, l'utilisation pratique de ces modèles indique que la précision des données sur les précipitations peut avoir un effet important sur les résultats obtenus dans le cas de courtes périodes. De plus, lorsque l'on compare les résultats des modèles dont la moyenne est calculée sur une maille de la grille, on se rend compte que les variations dans les précipitations à l'échelle d'une maille peuvent influer sur les comparaisons.

De même, les variations à l'échelle d'une maille dans d'autres champs d'entrée tels le vent, les émissions et les données géophysiques peuvent se traduire par des différences entre les résultats du modèle et les résultats observés. Par exemple, il est possible que,

pour un épisode donné, le manque de résolution temporelle ou spatiale des données sur le vent conduise à l'advection de sources particulières importantes dans la mauvaise direction (McCormick et al., 1989). Cet effet serait atténué si le calcul des moyennes liés aux relations source-récepteur était effectué sur de plus longues périodes. En outre, lorsque la taille de la grille est grande, il faut utiliser une vitesse moyenne de dépôts à l'intérieur de la grille qui peut introduire des erreurs dans l'estimation des dépôts secs.

3.3.2.c CONTRAINTES PRACTIQUES DE CALCUL

Le but fondamental d'une modélisation exhaustive est de considérer tous les détails pertinents connus au sujet d'un processus particulier à l'intérieur d'un cadre numérique commun. Le manque de connaissances précises sur les processus constitue une contrainte pour la mise au point de ces modèles de même que les données d'entrée disponibles pour le traitement. Les ressources informatiques nécessaires pour l'utilisation des modèles constituenet un troisième facteur qui limite la précision et l'exhaustivité de ces derniers. Il faut faire des compromis entre les considérations pratiques et ce qui peut être rigoureusement justifié d'un point de vue théorique. Ainsi, le nombre de variables utilisées pour élaborer le modèle est inférieur au nombre requis pour un modèle idéal.

Des modèles complexes comme RADM et ADOM font appel à des ordinateurs de la famille Cray pour effectuer leurs calculs. Les progrès réalisés dans la technologie informatique ont réduit le temps nécessaire au stockage des données et aux calculs, mais ces facteurs représentent encore une contrainte au moment de la préparation précédant l'utilisation des modèles. La préparation des champs d'entrée des données météorologiques et d'émissions exige aussi beaucoup de main-d'oeuvre et de ressources informatiques, ce qui limite l'ampleur des simulations. En outre, pour analyser la quantité de résultats obtenus à partir de ces modèles exhaustifs, il faut engager des ressources humaines et informatiques importantes.

3.3.3 QUESTIONS DE NON-LINÉARITÉ : CONSIDÉRATIONS LIÉES AUX PROCESSUS

S'il est possible d'isoler un ensemble de composés à la source et de réduire ses émissions sans changer les émissions d'autres matières, le processus comme tel ne fait alors pas entrer en ligne de compte des réactions non linéaires. Toutefois, des processus atmosphériques qui surviennent ultérieurement peuvent modifier son caractère linéaire ou non linéaire, notamment, un processus limité par un agent oxydant peut devenir linéaire si les composés qui doivent subir l'oxydation subissent une réduction. La formation d'agents oxydants qui dépend d'une certaine façon du rapport HCR/NO_x peut montrer une réponse non linéaire à la réduction des NO_x lorsque le rapport est petit (conditions urbaines).

Transformations chimiques :

Les processus les plus importants ont trait à la transformation des NO_x en nitrates et du SO_2 en sulfates. Ces processus peuvent se résumer par l'équation suivante :

Vitesse de transformation = k [X] [Y]

où : k = constante de vitesse de la réaction
[X] = concentration de X (qui peut être NO_x ou SO_2)
[Y] = concentration de Y (qui est un agent oxydant)

Ce processus est linéaire pourvu que le changement touchant [X] n'ait pas d'effet sur k ou sur [Y].

A. $\underline{X = NO_2}$

Dans ce cas, les composés oxydants prédominants sont Y = OH pendant le jour et Y = O_3 pendant la nuit. Puisque les concentrations de OH et de O_3 dépendent tout à fait de la concentration des NO_x (ainsi que de celle des hydrocarbures) (ex. : Finlayson-Pitts et Pitts, 1986), l'oxydation des NO_x en nitrates est en principe toujours un processus non linéaire. Toutefois, d'après des données obtenues dans une chambre de brouillard, dans des conditions particulières, le taux d'oxydation efficace est tout à fait linéaire (Spicer, 1983; Spicer et Holden, 1983); des modèles lagrangiens qui supposent que cette oxydation est (pseudo) linéaire ont été utilisés avec un certain succès (ex. : Bottenheim et al., 1984; Olson et al., 1989c).

B. $\underline{X = SO_2}$

Il existe deux façons assez différentes de transformer le SO_2 en sulfates : les réactions homogènes en phase gazeuse et les réactions en phase liquide dans les nuages.

i) Réactions homogènes en phase gazeuse. Au cours de ce processus, l'agent oxydant prédominant est Y = OH. Puisque la concentration du radical OH est déterminée par la chimie des hydrocarbures et des NO_x et puisque nous savons maintenant que ces réactions ne mènent pas à l'élimination du radical OH (ce dernier est en effet transformé en HO_2, lequel subit d'autres réactions pour reformer le radical OH, Stockwell et Calvert, 1983), ce processus est essentiellement linéaire.

ii) Réactions en phase liquide dans les nuages. La transformation du SO_2 en sulfates dans les nuages se fait de trois façons distinctes : l'oxydation par H_2O_2, par O_3 et la réaction avec O_2 catalysée par des ions métalliques. Bien que les particularités des mécanismes fondamentaux soient encore incertaines, nous en connaissons assez sur ces réactions pour affirmer

qu'elles sont toutes non linéaires.

a. $Y = H_2O_2$. Contrairement à la réaction du SO_2 avec OH en phase gazeuse, celle du SO_2 avec H_2O_2 a un effet sur la concentration de l'agent oxydant. Ceci est dû au fait que la vitesse de formation de H_2O_2 est beaucoup plus lente que la vitesse de réaction de ce dernier avec SO_2 et que le H_2O_2 ne se reforme pas à partir du produit de la réaction. Par conséquent, s'il y a davantage de SO_2 que de H_2O_2 dans l'air, la quantité d'oxydant (H_2O_2) peut s'épuiser bien avant que tout le SO_2 soit transformé en sulfates. Ces conditions se retrouvent souvent près des sources de SO_2 et de NO_2.

b. $Y = O_3$. Puisque la constante de la loi d'Henry est plutôt faible dans le cas de l'ozone, on s'attendrait normalement à ce que cette réaction n'ait qu'un effet minime sur les concentrations ambiantes d'O_3 et, par conséquent, que le manque d'oxydant ne constitue pas une facteur important. Cependant, le processus d'oxydation du SO_2 a pour effet de réduire le pH de l'eau des nuages. Puisque le coefficient de réaction du $SO_2 + O_3$ dans les nuages est fonction de la valeur du pH et qu'il diminue de façon impressionnante avec la diminution de ce dernier, le caractère non linéaire n'est pas dû cette fois à un effet sur [Y] mais sur k.

c. $Y = O_2$, avec l'ion métallique (Me^+) comme catalyseur. Le même raisonnement qui a été suivi pour la réaction $SO_2 + O_3$ s'applique : la réaction est non linéaire en raison de la dépendance du coefficient de réaction envers le pH.

Dépôts :

Il existe deux processus de formation de dépôts : la formation à sec et la formation humide. Bien qu'à première vue, ces deux processus soient linéaires, certains facteurs en font des processus qui ne sont pas tout à fait linéaires.

Dépôts secs

Ce processus de transfert des matières de l'atmosphère est essentiellement linéaire du fait que la "vitesse de dépôt" est indépendante de la concentration atmosphérique des composés en cause. C'est seulement au moment de l'adsorption des composés sur une surface que des processus chimiques induiront des effets non linéaires et ce sont généralement ces phénomènes qui expliquent finalement les différences entre les données essentiellement empiriques de différents modèles concernant "la vitesse de dépôt". Au stade de l'adsorption, l'hypothèse d'un niveau de saturation est très plausible.

Les dépôts de SO_2 sur des surfaces humides constituent un cas spécial. Ce processus peut causer des changements substantiels dans le pH et, par conséquent, la vitesse apparente de formation des dépôts secs "V_D" devient fonction de la concentration de SO_2. Aux Pays-bas, on propose un peu l'inverse, c'est-à-dire que de fortes teneurs de NH_3 créent un environnement alcalin qui augmente les dépôts secs de SO_2.

Formation de dépôts dans les précipitations :

Comme pour les dépôts secs, ce processus est essentiellement physique et, de ce fait, ne dépend pas beaucoup de la concentration des composés. Le caractère largement non linéaire de l'élimination des sulfates n'est pas dû au processus même de formation des précipitations, mais à la façon dont les sulfates sont produits dans l'eau des nuages. Néanmoins, il est concevable de penser que la concentration des sulfates peut en être l'une des causes possibles. Les aérosols de sulfates sont en général de bons noyaux de condensation des nuages; il est donc possible que la présence de grandes quantités d'aérosol se traduise par une élimination accrue, par les précipitations, des nitrates et des sulfates. Cet effet constituerait un caractère non linéaire dans l'élimination des sulfates. Les aérosols de nitrates sont des noyaux de condensation des nuages moins actifs, et leur abondance est généralement moins grande que celle des sulfates; on ne s'attend donc pas à que les dépôts humides de nitrates aient un caractère non linéaire.

3.3.4. MODÈLES LINÉAIRES

3.3.4.a INTRODUCTION

Les premières tentatives visant à simuler et à étudier le phénomène des dépôts acides à l'aide de modèles mathématiques sont fondées sur l'hypothèse selon laquelle la transformation des composés primaires en composés secondaires peut être caractérisée par un processus linéaire. Cependant, comme il a été souligné précédemment, cette hypothèse se révèle de plus en plus inappropriée à mesure que les données de recherche s'accumulent. En outre, en raison de la puissance des ordinateurs maintenant disponibles, il semble faisable de recourir à des modèles complexes comprenant des données détaillées sur la chimie pour tenir compte particulièrement de questions de non-linéarité. Les modèles linéaires ont encore une utilité pratique pour étudier les relations source-récepteur en raison de leur capacité prouvée de reproduire les configurations courantes des dépôts avec une précision raisonnable.

Dans la présente section, nous examinerons les résultats de modèles linéaires. Dans la section suivante, nous exposerons brièvement les résultats d'un modèle complexe important : ADOM.

3.3.4.b MÉTHODES DE MODÉLISATION

La documentation écrite mentionne habituellement trois genres de modèles linéaires. Les modèles STATISTIQUES constituent les modèles les plus simples; ils emploient des moyennes statistiques comme données météorologiques et comme paramètres de modélisation. Par conséquent, la validité des prévisions est limitée par la résolution temporelle et spatiale des données d'entrée et des diverses approximations utilisées dans l'élaboration du modèle. En bref, ce genre de modèles utilisent des solutions analytiques simplifiées (approximatives) des équations générales de transport appliquées à chacune des sources pour des paires de récepteurs. Des roses de fréquences des vents déterminent la direction du transport. Fisher (1975) a été l'un des premiers à tenter d'élaborer un modèle du genre. En 1978, il a perfectionné son modèle en incluant l'approche stochastique mise au point par Rodhe et Grandell (1972) pour le lessivage dû aux précipitations. Cette approche, qui considère le comportement stochastique d'une période moyenne de précipitations (humide) et d'une période moyenne sans précipitations (sèche) sur un endroit fixe est largement suivie dans l'élaboration des modèles statistiques (ex. : Venkatram et al., 1982).

Dans un ordre de complexité croissante viennent ensuite les modèles lagrangiens qui utilisent la méthode de la particule pour simuler l'advection des effluents. La dispersion est généralement décrite de façon idéale comme des bouffées ou des panaches qui se déplacent sur une surface horizontale. Le modèle élaboré par Olson et al. (1978) fait appel à des trajectoires tridimensionnelles. Cette approche de conception simple utilise les trajectoires des particules d'air pour déterminer la position d'une bouffée ou d'un panache d'effluents. Les changements dans la concentration de l'air résultent des équilibres entre les termes sources et les termes de dissipation à l'intérieur du segment de bouffée ou de panache. Puisque chaque bouffée peut être isolée, la limite inférieure d'applicabilité des échelles temporelles et spatiales découle de la résolution des données d'entrée ainsi que de la nature statistique du transport et de la diffusion, lesquels sont modélisés par un nombre fini de trajectoires. La façon dont ces modèles traitent la dispersion des panaches influe aussi sur la résolution spatiale et temporelle minimale des résultats. Eliassen (1980), en Europe, a été parmi les premiers à réaliser des travaux dans ce domaine; il a évalué la position approximative de chaque bouffée en considérant qu'elle occupe le volume de la grille qui contient la pointe finale de la trajectoire. En Amérique du Nord, Endlich et al. (1983) ont modélisé des bouffées comme des cylindres rigides qui grossissent et sont transportés par les trajectoires. Ce modèle, ENAMAP, a été adopté et perfectionné par l'EPA (É.U.) pour devenir RELMAP (Eder et al., 1986); ce dernier a été l'un des modèles évalués dans le cadre du projet ISDME qui sera décrit plus loin. D'autres tentatives fondées sur la flexibilité du modèle lagrangien ont fait entrer en ligne de compte des bouffées gaussiennes représentant la dispersion des polluants loin du "centre" idéal de la bouffée (ex. : Ellenton et al., 1985; Benkley et Bass, 1979). L'EPA a cité les travaux de Benkley et Bass et al. comme pouvant être perfectionnés; ils ont donc été améliorés pour devenir MESOPUFF II (Scire et al., 1983; 1984), qui est le modèle le plus flexible parmi les modèles lagrangiens.

L'annexe 3G illustre comment un modèle linéaire lagrangien peut être appliqué à l'évaluation d'un scénario d'émissions. Quatre scénarios ont été simulés : a. un scénario de base pour les émissions de 1980; b. un scénario de base pour les émissions aux É.-U. en 1980 qui tient compte de la réduction des émissions au Canada jusqu'en 1994 conformément au programme "Les pluies acides : un compte à rebours"; et c. et d. les émissions au Canada réduites conformément au programme susmentionné avec prise en compte des réductions aux É.-U. jusqu'en 1995 (c) et jusqu'en l'an 2000 (d) estimées d'après les propositions formulées par le président Bush visant la réduction des émissions de 4,5 et de 9 millions de tonnes, respectivement. D'après les résultats, la réduction des dépôts de $SO_4^=$ due au programme canadien seulement ne serait pas très importante sans réduction des émissions aux É.-U. Dans cet exercice avec les modèles linéaires, le pourcentage de changement dans les dépôts a été jugé plus fiable que le volume absolu des dépôts.

Les modèles eulériens peuvent également être utilisés pour représenter les aspects chimiques linéaires. Leur cadre, qui convient davantage aux produits chimiques réactifs, est basé sur la résolution d'équations de transport et d'équilibre statique à chacun des points de la grille du domaine de modélisation. Puisque ce genre de modélisation exige beaucoup de données météorologiques ainsi que de grandes ressources informatiques, il n'a pas été utilisé aussi fréquemment pour modéliser les systèmes linéaires. Le modèle de transport régional (RTM-II, Liu et al., 1981) est le seul modèle de ce genre, d'après l'Electric Power Institute (EPRI, 1984), qui convient à l'évaluation détaillée.

3.3.4.c ÉVALUATION DES MODÈLES LINÉAIRES DE TRANSPORT À GRANDE DISTANCE

En 1980, les gouvernements américain et canadien ont conclu une entente en vue d'étudier les questions liées au phénomène des précipitations acides et de recommander des mesures à prendre par les deux gouvernements. L'un des sous-comités (modélisation régionale) formé en vertu de cette entente bilatérale (Mémoire déclaratif d'intention entre les États-Unis et le Canada sur le transport à grande distance des polluants atmosphériques, MDI) a été chargé de sélectionner des modèles de transport à grande distance pertinents afin de les comparer, de les évaluer et de recommander le modèle le plus approprié aux fins d'une réglementation (MDI, 1982b).

Huit modèles (AES, MEP, MOE, ASTRAP, CAPITA, ENAMAP-1, RCDM-3, UMACID), dont les trois premiers sont canadiens, ont été choisis. Tous ces modèles considèrent les réactions chimiques comme linéaires. Ils sont représentatifs des diverses méthodes d'élaboration et techniques utilisées par les modélisateurs, et chacun a été élaboré en vue d'une utilisation finale différente. Par exemple, le modèle ASTRAP considère la moyenne d'un ensemble de trajectoires comme la trajectoire d'advection et il est conçu pour simuler des moyennes à long terme. En revanche, le modèle AES considère des trajectoires à deux pressions différentes (850 mb et 1 000 mb) pour obtenir la meilleure estimation des variations à court terme. Cette diversité de même que l'incertitude des

connaissances ont rendu impossible le choix d'un modèle "idéal" à des fins de réglementation ou d'établissement de lois. Néanmoins, cette étude détermine l'orientation des activités futures de modélisation. En voici les conclusions et les recommandations.

"Bien que les opinions diffèrent toujours au sein des modélisateurs quant à la bonne méthode et aux statistiques à utiliser pour l'évaluation et la comparaison des résultats des modèles, le sous-comité de la modélisation régionale formé en vertu du MDI a désigné des critères d'évaluation communs en vue de l'exécution de cette tâche à l'égard des huit modèles choisis."

"Il est généralement convenu qu'il faut s'attendre à ce que les prévisions des modèles diffèrent des mesures, car un modèle pratique ne peut pas tenir compte des connaissances courantes au sujet des processus chimiques et physiques pertinents, et les bases de données dont nous disposons sur les émissions et la surveillance contiennent des imprécisions et sont insuffisantes pour estimer la moyenne globale que le modèle est supposé prévoir. En raison de ces lacunes, il n'est pas possible de quantifier les incertitudes dans les prévisions des modèles d'après les différences entre ces prévisions et les observations (différences résiduelles)."

"En outre, l'hypothèse de linéarité considérée par les modèles prévoit des constantes de vitesse qui sont indépendantes des émissions et des concentrations des co-polluants. Il reste à savoir si les modèles linéaires de transport du soufre produisent des approximations préliminaires convenables en l'absence de modèles non linéaires opérationnels. Il appartient donc à chaque scientifique particulier de juger si les effets non linéaires invalideraient ou non les résultats généraux saisonniers et annuels de ces modèles linéaires."

Voici un certain nombre de conclusions qui ont été tirées au sujet de chaque élément des modèles d'après l'examen des huit modèles de transport à grande distance et la comparaison de leurs prévisions avec les données observées.

1. Lorsque les échantillons de champs de vents sont exposés pour les huit modèles, on constate que l'average des vents de transport pour ces modèles varient beaucoup, selon le type de données utilisées pour produire l'écoulement du vent. Les modèles se présentent sous forme de trajectoires moyennes et d'écarts types (voir figures 3.3.1 et 3.3.2) pour les mois de janvier et juillet et pour deux points aux É.-U. et au Canada, et aussi sous forme de statistiques à différents temps de déplacement pour ces deux endroits. Ces différences dans le calcul des trajectoires moyennes, lesquelles reflètent aussi les diverses données brutes utilisées, constituent vraiment un facteur de différence dans les résultats des modèles.

2. Un essai analogue est effectué pour les précipitations qui constituent le deuxième facteur météorologique important pour tous les modèles. Cet essai révèle que les

méthodes d'établissement des grilles pour les précipitations varient grandement entre les modèles. Les variations proviennent soit de l'établissement de grilles à partir d'observations horaires sur des échelles de temps et d'espace compatibles avec les étapes du temps d'advection considérées par le modèle (ENAMAP-1 ET AES), soit du calcul des durées moyennes des périodes de précipitations et des périodes sèches au cours d'une saison ou d'une année (MOE et CAPITA). Ces grandes variations dans l'entrée des quantités de précipitations sont un deuxième facteur de différence dans les résultats.

3. Les incertitudes liées aux données sur les émissions n'étaient pas disponibles au moment de l'évaluation des modèles. Il n'est pas improbable que ces incertitudes soient fonction des régions sources, ce qui influerait beaucoup sur les résultats des modèles, car un facteur d'incertitude constant ne ferait que gauchir les résultats. De plus, puisque les données sur les émissions n'étaient disponibles que sous forme de totaux annuels, on ne peut s'attendre à ce que les modèles simulent avec exactitude les variations mensuelles ou saisonnières des émissions. Afin de bien analyser le comportement des prédictions des modèles, il faudrait connaître l'ordre de grandeur et la variabilité spatiale de toutes les incertitudes liées aux émissions.

4. Afin de corriger les erreurs associées à l'efficacité de la collecte, à l'évaporation et à la contamination des échantillons, il a fallu procéder à un tri important des données sur les dépôts de soufre et sur les concentrations de sulfates. Parmi les trois réseaux (EPRI SURE, MAP3S et CANSAP) qui englobent plus de soixantes emplacements dans tout l'est de l'Amérique du Nord, nous n'avons pas trouvé suffisamment de données, après le tri, pour effectuer une évaluation significative des modèles. L'évaluation servira donc de démonstration des méthodes statistiques à utiliser et d'indication préliminaire de la performance des modèles.

5. D'après une comparaison des résultats des modèles avec les données observées, tous les modèles fonctionnent mieux dans le cas des prévisions des dépôts humides de soufre que dans le cas des concentrations atmosphériques de sulfates. Nous n'avons pas tenu compte du SO_2 dans le cadre de cette comparaison en raison de la contamination inévitable des données par les sources locales et des erreurs dans les mesures à de très faibles concentrations. Ceci est un peu surprenant parce que les dépôts humides de soufre sont très épisodiques (la plupart d'entre eux se produisent au cours de quelques précipitations) tandis que les modèles présentaient les résultats comme étant non épisodiques ou à plus long terme. Néanmoins, les modèles reproduisent le bon ordre de grandeur des caractéristiques des grandes échelles de temps et d'espace des champs de dépôts humides de soufre.

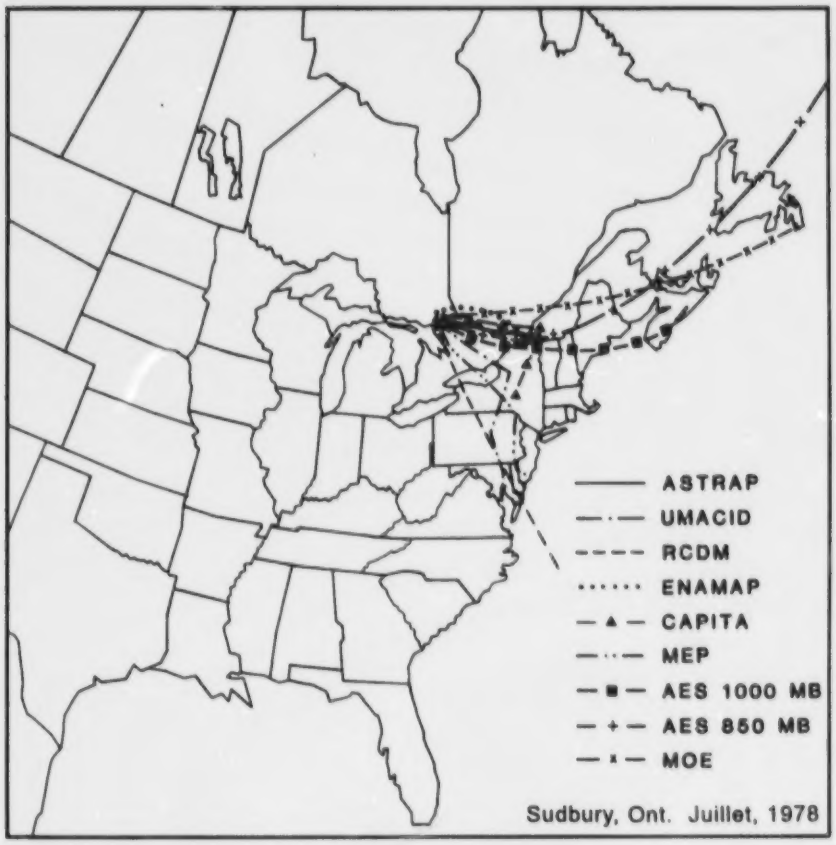


Figure 3.3.1 Trajectoires utilisées par les modèles à partir de Sudbury (Ontario) en janvier 1978.

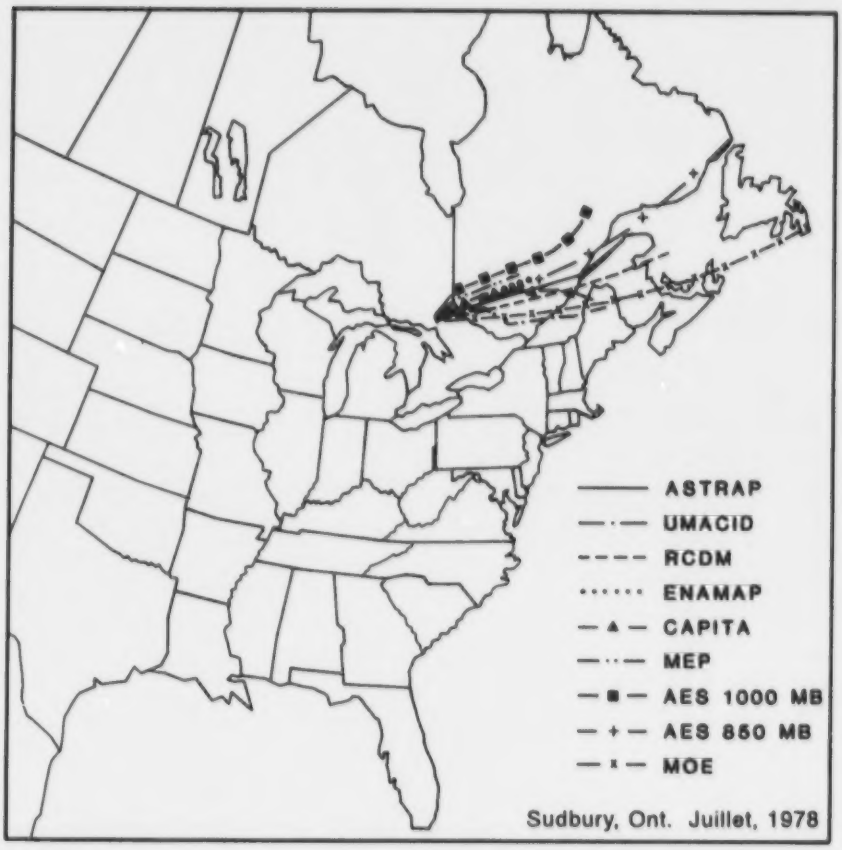


Figure 3.3.2 Trajectoires utilisées par les modèles à partir de Sudbury (Ontario) en juillet 1978.

6. Nous n'avons trouvé que quelques points liés aux données qui convenaient à l'évaluation des prévisions des modèles. Ce handicap, jumelé aux incertitudes inconnues dans l'inventaire des émissions et dans les données sur les précipitations, empêche le classement des modèles en terme de performance absolue.

7. La diversité des paramètres choisis pour ces modèles opérationnels traduit le fait que ces derniers ont été élaborés de façon indépendante. Les variations dans les techniques et le choix des paramètres reflète la gamme des opinions et des jugements scientifiques qui existent parmi les modélisateurs. Il n'est pas du tout surprenant qu'il y ait des différences de précision entre les modèles lorsque ces derniers sont appliqués à un seul ensemble de données. Au contraire, d'après l'importance de la concordance entre les résultats des modèles ainsi qu'entre ces résultats et les données observées sur les dépôts humides de soufre, il semble que les modèles aient capté l'essence du transport à grande distance.

8. Les matrices de transfert produites pour les composés du soufre par les huit modèles de transport à grande distance révèlent des différences entre les grandeurs absolues des éléments de ces matrices pour un même modèle ainsi qu'entre les modèles pour le même élément.

Des matrices de transfert ont été produites pour 40 régions d'émissions à 9 récepteurs (fig. 3.3.4) ainsi que pour 11 régions d'émissions à 9 autres récepteurs (fig. 3.3.3). Ces matrices sont fondées sur des émissions unitaires et ne reflètent pas l'effet réel d'une région sur un récepteur. Les 9 récepteurs (tableau 3.3.1) représentent des régions vulnérables de l'est de l'Amérique de Nord. Les figures 3.3.3 et 3.3.4 présentent les régions d'émissions (40 et 11). Les éléments des matrices de transfert ont ensuite été classés selon leur grandeur à l'emplacement des récepteurs, et les rangs attribués ont été corrélés à l'aide du coefficient de rang de Spearman. Les tableaux 3.3.2 et 3.3.4 présentent ces coefficients pour les différents modèles relativement à l'emplacement Muskoka (Ontario) (Dorset) dans le cas des concentrations des sulfates au niveau du sol ainsi que des dépôts secs et humides, respectivement. Les statistiques sur les rangs ne sont présentées que pour les 11 sources et les 9 récepteurs. Cependant, les valeurs relatives aux 40 sources et aux 9 récepteurs révèlent une corrélation semblable dans la détermination des rangs. La valeur 1 indique une correspondance parfaite entre les modèles pour ce qui est de l'ordre des rangs attribués aux éléments des matrices.

Tableau 3.3.1

Emplacements récepteurs vulnérables qui sont visés

Abréviation	Nom
BW	Eaux limitrophes (Ontario)
ALG	Algoma (Ontario)
MUSK	Muskoka (Ontario) (Dorset)
QUEB	Ville de Québec (Québec)
VT	Vermont (New Hampshire)
ADIR	Adirondacks (New York)
SNSC	Sud de la Nouvelle-Écosse
PENN	Ouest de la Pennsylvanie
SMOK	Sud des Appalaches

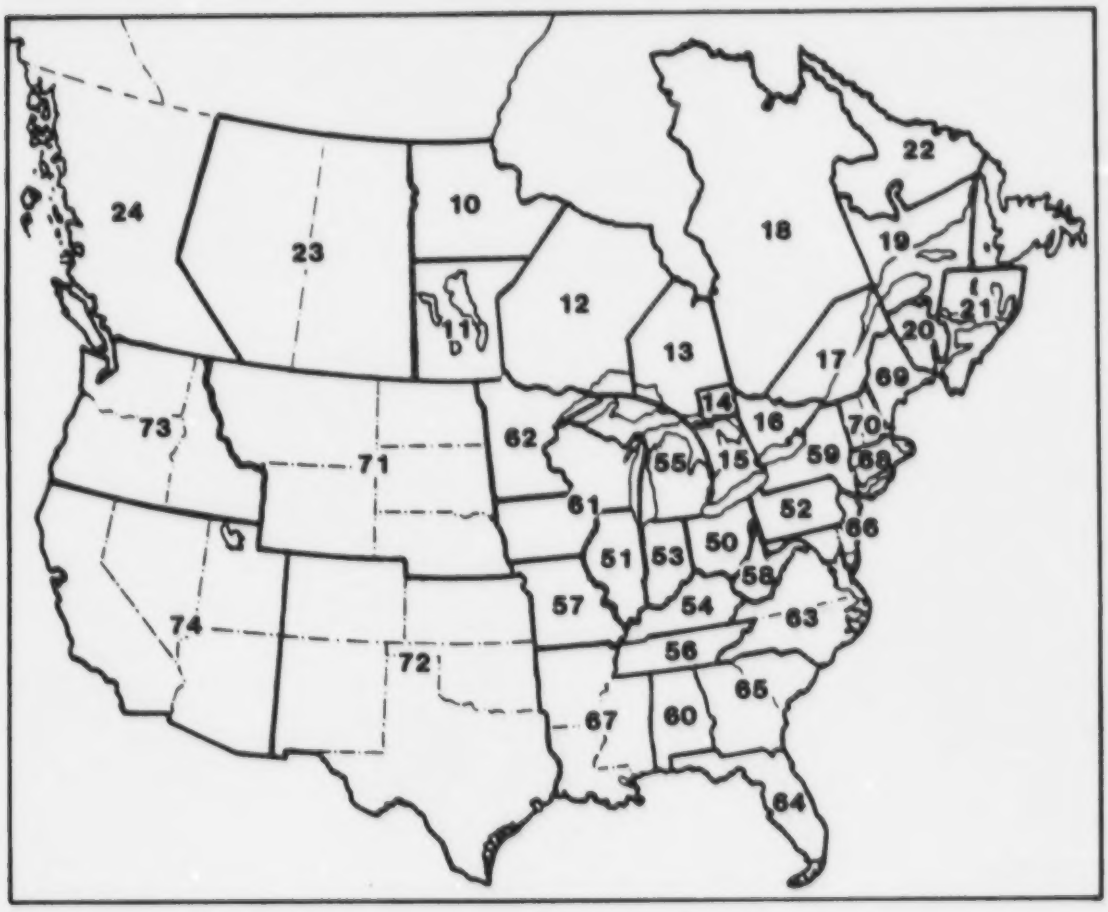


Figure 3.3.3 Régions sources des émissions en Amérique du Nord.

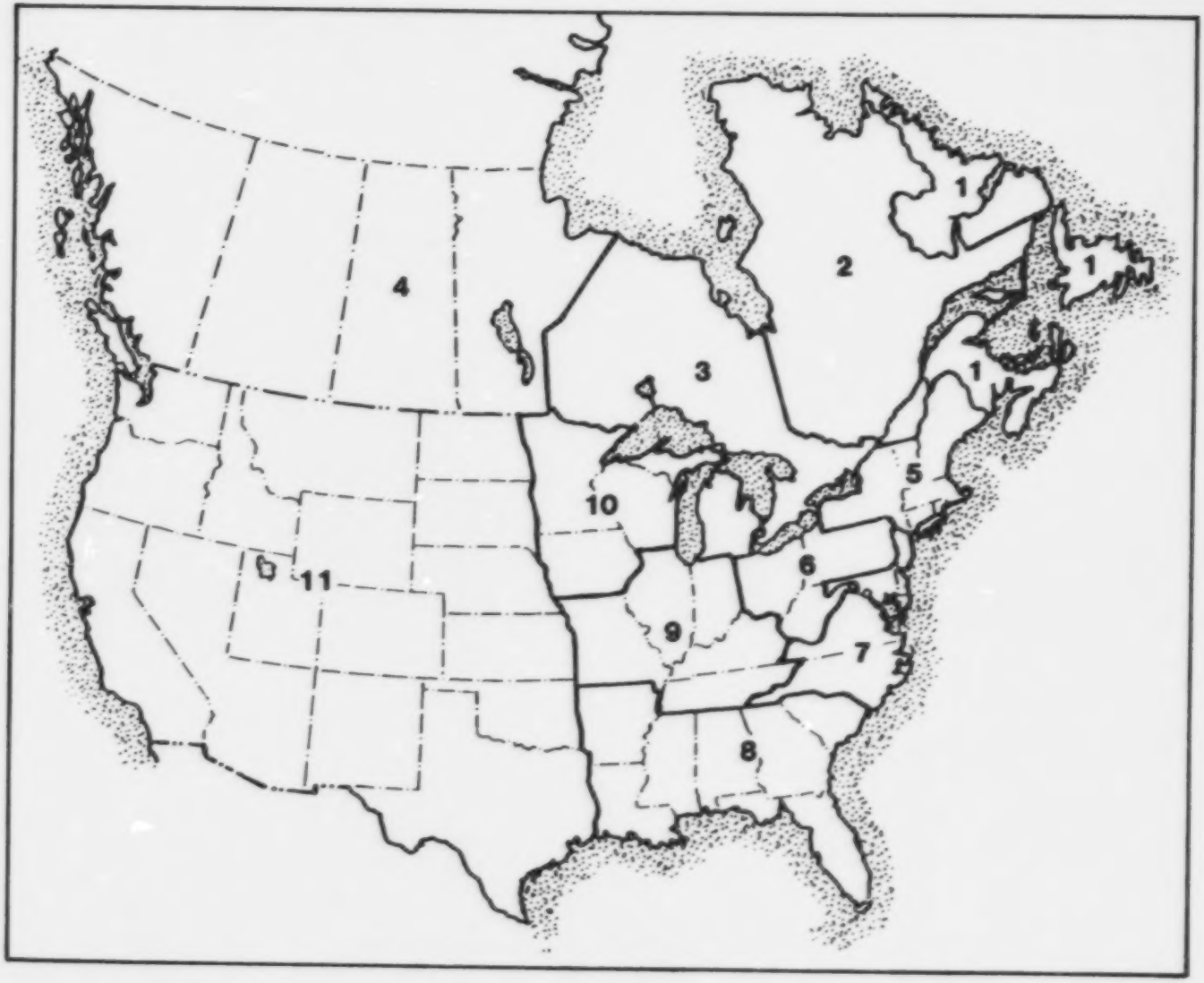


Figure 3.3.4 Régions de l'Amérique du Nord pour lesquelles les émissions ont été rassemblées.

Tableau 3.3.2

Résumé des coefficients de rang de Spearman attribués aux concentrations de $SO_4^=$ au niveau du sol à Muskoka (découlant du MDI; 1982b)

MODÈLE	AES	ASTRAP	CAPITA	ENAMAP-1	MEP	MOE	RCDM-3	UMACID
AES	------	.82	.90	.92	.93	.98	.65	.96
ASTRAP		------	.72	.84	.79	.81	.69	.87
CAPITA			------	.93	.85	.89	.75	.86
ENAMAP-1				--------	.89	.94	.73	.94
MEP					------	.94	.62	.90
MOE						-----	.70	.96
RCDM-3							------	.75
UMACID								-----

Tableau 3.3.3

Résumé des coefficients de rang de Spearman attribués aux dépôts secs à Muskoka (découlant du MDI; 1982b)

MODÈLE	AES	ASTRAP	CAPITA	ENAMAP-1	MEP	MOE	RCDM-3	UMACID
AES	----	.94	.95	.95	.93	.98	.79	.96
ASTRAP		----	.91	.95	.89	.91	.85	.95
CAPITA			----	.91	.89	.91	.84	.95
ENAMAP-1				----	.94	.94	.85	.94
MEP					----	.93	.82	.92
MOE						----	.74	.95
RCDM-3							----	.85
UMACID								----

Tableau 3.3.4

Résumé des coefficients de rang de Spearman attribués aux dépôts humides à Muskoka (découlant du MDI; 1982b)

MODEL	AES	ASTRAP	CAPITA	ENAMAP-1	MEP	MOE	RCDM-3	UMACID
AES	----	.85	.95	.91	.93	.90	.76	.94
ASTRAP		----	.78	.85	.71	.59	.88	.95
CAPITA			----	.96	.92	.89	.75	.73
ENAMAP-1				----	.79	.78	.80	.92
MEP					----	.93	.54	.83
MOE						----	.45	.73
RCDM-3							----	.88
UMACID								----

Ces résultats montrent que les modèles concordent relativement bien quant aux rangs attribués aux contributeurs pour le récepteur Muskoka (Ontario), en particulier en ce qui a trait aux concentrations atmosphériques et aux dépôts secs, pour lesquels la plupart des coefficients se trouvent dans l'intervalle de 0,8 à 1,0. La concordance légèrement plus faible des coefficients de rang attribués en regard des dépôts humides peut avoir été causée par la nature sporadique des précipitations ainsi que par la méthode de répartition, à l'intérieur de la grille, des données sur les précipitations.

Voldner et Olson (1982) ont examiné la corrélation des rangs entre 7 modèles découlant du MDI dans le cas des données obtenues grâces aux 40 sources et aux 9 récepteurs. Le modèle RCDM n'a pas produit de données pour les 40 régions sources. Les rangs attribués par les modèles pour les dépôts humides de soufre à Muskoka figurent au tableau 3.3.5. D'après cinq modèles, le sud-ouest de l'Ontario (SWO) vient au premier rang pour ce qui est des répercussions possibles à Muskoka. Le modèle AES a classé le Michigan (MCH) au deuxième rang et Sudbury (SUD) au troisième tandis que le modèle MOE a classé Sudbury en premier, le sud-ouest de l'Ontario en deuxième et le Michigan en troisième. Lorsqu'on établit la corrélation entre tous les rangs attribués par les modèles, on obtient des tableaux semblables au tableau 3.3.4.

Les tableaux 3.3.6 et 3.3.7 (Olson et al., 1983) montrent les matrices unitaires de transfert ou les relations source-récepteur établies par le modèle AES. Elles sont analogues à l'élément X_{ij} de l'équation (1) où "i" représente les 40 régions sources et "j", les 9 emplacements récepteurs, ce qui donne une matrice de 40 X 9. Le tableau 3.3.6 expose les valeurs des matrices unitaires qui relient chaque région source à chaque récepteur pour ce qui est de la concentration atmosphérique des sulfates par émission unitaire. Selon la matrice, Sudbury (SUD) est le premier contributeur potentiel en importance aux concentrations atmosphériques de sulfates à Muskoka, suivi par le Michigan (MCH) et le nord-ouest de l'Ontario (NWO). Lorsqu'on multiplie toutes les valeurs de la matrice par les émissions appropriées pour chaque région source (S_i), on obtient la concentration atmosphérique de sulfates fournie par les sources à chaque récepteur. En faisant le total des colonnes, on obtient la concentration atmosphérique de sulfates à chaque récepteur estimée par le modèle à partir de toutes les matrices. De même, le tableau 3.3.7 présente la matrice unitaire des dépôts humides. Dans ce cas, le sud-ouest de l'Ontario (SWO) est le premier contributeur en importance de dépôts humides suivi par le Michigan et Sudbury, comme l'indique le tableau 3.3.5. Les matrices peuvent donc faire la différence entre les épisodes de précipitations (tableau 3.3.7) et d'autres activités météorologiques (tableau 3.3.6). Encore une fois, la multiplication des valeurs de la matrice par les émissions de la source correspond à la contribution estimée par le modèle de chaque source aux dépôts humides de sulfates. En additionnant les colonnes, on obtient le total des dépôts humides qui proviennent de toutes les sources anthropiques à chaque emplacement. Lorsque les dépôts de fond (B_j) sont ajoutés, l'équation (1) exprime le total des dépôts (D_j) de façon linéaire.

D'après le tableau 3.3.2, le seul modèle dont la corrélation avec les autres en ce qui concerne les rangs est constamment plus faible est le modèle RCDM-3. Si l'on fait exception de ce modèle, on peut dire que le modèle AES est bien corrélé avec la plupart des autres modèles. Selon le rapport découlant du MDI (2 F-M, 1982b), le modèle AES suggère que l'Ontario est le plus important contributeur quant aux concentrations au niveau du sol ainsi qu'aux dépôts secs et humides au site Muskoka. L'Ontario est suivie par l'ensemble de la région 10, qui comprend le Michigan, le Wisconsin, le Minnesota et l'Iowa (figure 3.3.4). Cette répartition est corroborée par tous les autres modèles sauf CAPITA (ou MCARLO), lequel classe la région 3 (Québec) avant la région 10 pour ce qui est des concentrations atmosphériques et des dépôts secs à Muskoka, mais les rangs attribués correspondent au classement susmentionné dans le cas des dépôts humides. Le modèle RCDM-3 a classé les contributions différemment et a placé l'ensemble de la région 6 (Pennsylvanie, Ohio et Virginie de l'Ouest) ou de la région 9 (Indiana, Illinois, Missouri, Kentucky et Tennessee) avant les autres. Ceci signifierait que l'Ontario n'est pas le plus important contributeur pour un emplacement situé dans ses limites provinciales. Les différents modèles concordent moins pour ce qui est du troisième rang. Néanmoins, sauf dans le cas du RCDM-3, c'est soit la région 2, 6 ou 9. Ceci signifie que la réduction des émissions concentrée dans quelques principaux États (É.-U.) et provinces (Canada) produirait le plus d'avantages à l'endroit des récepteurs.

Le sous-comité de la modélisation a ensuite formulé onze recommandations en vue d'améliorer la performance des modèles de transport à grande distance et d'accroître la confiance accordée à leurs résultats. Les recommandations visaient surtout l'amélioration des données d'entrée (météorologie, précipitations et émissions) et d'évaluation en vue de réduire les incertitudes associées aux utilisations des modèles et de délimiter les points forts et les points faibles de l'élaboration de ces derniers. Les incertitudes résiduelles devraient être quantifiées, et leurs effets sur les résultats des modèles délimités à l'aide de tests de sensibilité. Ces recommandations ont été ajoutées au programme ISDME qui sera discuté dans la prochaine section.

Deux des onze recommandations comprises dans la liste suggéraient plus que des améliorations aux techniques existantes et mettaient l'accent sur les progrès scientifiques. L'une d'entre elles exigeait l'étude des effets de la non-linéarité à l'aide d'analyses de sensibilité liées aux vitesses d'oxydation et de lessivage. Bien que l'on puisse maintenant se demander comment les analyses de sensibilité faisant appel aux techniques disponibles pour les modèles linéaires pourraient jeter de la lumière sur la question de la non-linéarité, il reste que cette préoccupation démontre la volonté du sous-comité de faire face directement à un problème peut-être important. L'autre recommandation d'intérêt demandait d'entreprendre l'évaluation de modèles de transport régional et de dépôts des NO_x.

Tableau 3.3.5

Établissement des rangs par les modèles pour Muskoka (Ontario) - Dépôts humides annuels (1978) de soufre

RÉGION		AES-LRT	ASTRAP	MOE	MEP	ENAMAP	CAPITA	UMACID	RCDM
10	NMN	21	2	24	33	*	*	*	*
11	SMN	16	18	10	22	35	25	31	*
12	NWO	6	16	8	18	21	16	18	*
13	NEO	14	8	5	6	4	4	4	*
14	SUD	3	6	1	3	2	2	3	*
15	SWO	1	1	2	1	3	1	1	*
16	SEO	5	3	4	5	1	6	7	*
17	SLV	22	40	16	13	34	23	26	*
18	NQU	12	17	9	14	9	7	23	*
19	GBY	40	39	34	24	33	30	34	*
20	NBK	39	38	31	23	32	33	32	*
21	NSP	38	37	35	27	31	34	33	*
22	NFL	37	36	37	32	30	35	*	*
23	ASK	31	30	23	31	*	*	*	*
24	BCA	36	35	*	*	*	*	*	*
50	OHO	4	10	11	4	6	5	5	*
51	ILL	8	4	14	12	19	9	6	*
52	PEN	7	11	15	8	8	10	9	*
53	IND	9	7	13	10	10	13	8	8
54	KEN	10	12	20	20	11	11	14	*
55	MCH	2	2	3	2	5	3	2	*
56	TEN	17	15	27	28	12	15	15	*
57	MSU	20	9	19	19	15	17	13	*
58	WVR	13	14	17	9	7	8	12	*
59	NYK	11	19	12	7	14	14	11	*
60	ALA	29	21	30	35	29	19	19	*
61	WIO	15	5	6	11	18	12	10	*
62	MIN	18	13	7	15	17	18	17	*
63	VNC	25	22	28	21	28	20	20	*
64	FLD	35	31	36	34	27	31	30	*
65	GSC	26	26	33	30	26	24	25	*
66	MDJ	19	23	22	16	13	22	16	*
67	ALM	27	20	32	29	16	21	21	*
68	MCR	24	27	25	26	25	29	22	*
69	MAN	34	34	26	25	24	32	27	*
70	VNH	23	29	21	17	23	28	24	*
71	WNE	28	24	18	*	20	27	29	*
72	WSE	30	25	29	*	22	26	28	*
73	WNW	33	33	*	*	*	*	*	*
74	WSW	32	32	*	*	*	*	*	*

* ÉLÉMENT MANQUANT POUR LA RÉGION

Tableau 3.3.6

Modèle annuel AES-LRT (1978) - Matrice unité du $SO_4^=$ en microgrammes par mètres cubes par Tg émis

RÉGION		BW	ALG	MUSK	QUEB	SNSC	VT	ADIR	PENN	SMOK
10	MNM	1.11	0.66	0.33	0.25	0.16	0.25	0.20	0.12	0.04
11	SMN	2.31	0.77	0.77	0.0	0.0	0.0	0.0	0.77	0.0
12	NWO	1.67	1.67	1.67	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
13	NEO	0.26	2.21	1.30	0.91	0.26	0.91	1.04	0.65	0.0
14	SUD	0.04	0.73	3.00	1.13	0.84	1.39	2.10	0.66	0.09
15	SWO	0.0	0.12	1.36	0.72	0.78	1.39	1.62	1.77	0.20
16	SEO	0.0	0.29	0.88	0.88	1.18	2.06	2094	0.29	0.0
17	SLV	0.0	0.05	0.14	1.02	1.58	2.33	0.93	0.19	0.05
18	NQU	0.25	0.76	1.42	1.45	0.91	1.53	1.93	0.22	0.04
19	GBY	0.0	0.0	0.0	0.18	0.73	0.18	0.0	0.0	0.0
20	NBK	0.0	0.0	0.0	0.10	1.06	0.10	0.10	0.0	0.0
21	NSP	0.0	0.0	0.0	0.17	0.34	0.0	0.0	0.0	0.0
22	NFL	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
23	ASK	0.38	0.10	0.07	0.0	0.0	0.03	0.03	0.07	0.07
24	BCA	0.10	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
50	OHO	0.0	0.04	0.57	0.17	0.31	0.41	0.64	2.19	0.60
51	ILL	0.04	0.43	0.53	0.17	0.11	0.23	0.37	0.59	1.03
52	PEN	0.0	0.03	0.30	0.19	0.35	0.49	0.86	2.31	0.10
53	IND	0.01	0.27	0.27	0.10	0.14	0.24	0.33	0.85	1.48
54	KEN	0.0	0.04	0.18	0.02	0.08	0.12	0.18	0.78	2.09
55	MCH	0.09	0.45	1.75	0.57	0.45	0.78	0.92	1.54	0.24
56	TEN	0.0	0.04	0.10	0.0	0.02	0.02	0.08	0.37	2.82
57	MSU	0.03	0.21	0.21	0.05	0.05	0.10	0.16	0.39	1.01
58	WVR	0.0	0.0	0.22	0.12	0.16	0.32	0.58	1.90	0.54
59	NYK	0.0	0.14	0.27	0.37	0.80	0.82	1.17	0.31	0.04
60	ALA	0.0	0.0	0.03	0.0	0.0	0.0	0.03	0.15	1.71
61	WIO	0.27	0.92	0.69	0.18	0.16	0.25	0.39	0.71	0.37
62	MIN	0.83	0.83	0.45	0.15	0.15	0.15	0.23	0.45	0.23
63	VNC	0.0	0.0	0.02	0.02	0.09	0.12	0.16	0.49	0.84
64	FLD	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.02	0.33
65	GSC	0.0	0.0	0.02	0.0	0.02	0.02	0.06	0.23	2.72
66	MDJ	0.0	0.03	0.13	0.16	0.51	0.32	0.45	0.27	0.0
67	ALM	0.0	0.0	0.04	0.0	0.0	0.0	0.0	0.08	0.91
68	MCR	0.03	0.0	0.20	0.27	1.20	0.30	0.37	0.10	0.0
69	MAN	0.0	0.0	0.0	0.22	2.67	0.22	0.22	0.0	0.0
70	VNH	0.0	0.0	0.0	0.36	1.25	0.36	0.36	0.0	0.0
71	WNE	0.41	0.16	0.10	0.0	0.03	0.03	0.03	0.10	0.10
72	WSE	0.07	0.03	0.03	0.01	0.01	0.01	0.02	0.04	0.11
73	WNW	0.12	0.02	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.02
74	WSW	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0

Tableau 3.3.7

Modèle annuel AES-LRT (1978) - Matrice unité des dépôts humides en kilogrammes de S par hectare par Tg émis

RÉGION		BW	ALG	MUSK	QUEB	SNSC	VT	ADIR	PENN	SMOK
10	NMN	0.45	0.45	0.25	0.12	0.04	0.20	0.29	0.04	0.0
11	SMN	1.54	0.77	0.77	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
12	NWO	1.67	1.67	1.67	1.67	1.67	1.67	1.67	0.0	0.0
13	NEO	0.26	2.99	0.91	1.04	0.78	1.43	1.04	0.52	0.0
14	SUD	0.06	2.25	3.10	1.86	0.47	1.56	2.21	0.71	0.0
15	SWO	0.0	1.07	4.38	1.57	0.96	1.74	2.14	2.26	0.12
16	SEO	0.0	0.59	1.76	2.06	0.88	3.53	4.12	0.29	0.0
17	SLV	0.0	0.14	0.19	4.56	1.30	5.40	1.44	0.28	0.0
18	NQU	0.04	0.51	0.95	1.42	0.76	1.35	2.11	0.15	0.0
19	GBY	0.0	0.0	0.0	0.36	0.73	0.36	0.0	0.0	0.0
20	NBK	0.0	0.0	0.0	0.29	1.73	0.29	0.29	0.0	0.0
21	NSP	0.0	0.0	0.0	0.51	1.27	0.17	0.08	0.0	0.0
22	NFL	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
23	ASK	0.31	0.07	0.03	0.0	0.0	0.03	0.03	0.03	0.03
24	BCA	0.10	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
50	OHO	0.01	0.28	1.97	0.50	0.21	1.06	1.42	4.59	0.27
51	ILL	0.19	1.38	1.18	0.50	0.10	0.26	0.37	0.99	0.73
52	PEN	0.0	0.31	1.32	0.75	0.34	1.76	2.29	7.07	0.06
53	IND	0.03	1.06	1.15	0.17	0.14	0.34	0.55	1.41	0.97
54	KEN	0.0	0.12	1.08	0.06	0.10	0.32	0.62	1.77	1.67
55	MCH	0.21	2.32	3.13	1.11	0.36	0.83	1.11	1.73	0.17
56	TEN	0.0	0.16	0.51	0.04	0.08	0.12	0.41	1.34	4.48
57	MSU	0.25	0.83	0.39	0.08	0.07	0.10	0.13	0.49	0.72
58	WVR	0.0	0.04	0.93	0.60	0.14	1.55	1.83	5.91	0.20
59	NYK	0.0	0.49	1.04	1.43	1.45	2.72	3.74	0.82	0.02
60	ALA	0.0	0.03	0.06	0.03	0.0	0.03	0.06	0.51	3.71
61	WIO	0.55	1.95	0.82	0.27	0.11	0.25	0.39	1.08	0.27
62	MIN	1.43	1.50	0.45	0.15	0.08	0.23	0.23	0.53	0.15
63	VNC	0.0	0.02	0.16	0.28	0.33	0.77	0.93	2.68	0.72
64	FLD	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.02	0.09	2.26
65	GSC	0.0	0.02	0.13	0.02	0.04	0.11	0.27	0.90	8.51
66	MDJ	0.0	0.05	0.40	0.99	0.83	1.93	2.06	1.26	0.03
67	ALM	0.0	0.12	0.08	0.0	0.0	0.0	0.08	0.25	0.95
68	MCR	0.0	0.03	0.17	1.24	2.74	2.07	1.84	0.13	0.0
69	MAN	0.0	0.0	0.0	1.11	3.78	1.11	0.67	0.0	0.0
70	VNH	0.0	0.0	0.18	1.79	2.32	2.50	1.43	0.0	0.0
71	WNE	0.41	0.19	0.06	0.03	0.0	0.03	0.0	0.10	0.10
72	WSE	0.28	0.08	0.03	0.01	0.01	0.02	0.01	0.01	0.13
73	WNW	0.07	0.05	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
74	WSW	0.01	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0

3.3.4.d PROJET INTERNATIONAL D'ÉVALUATION DES MODÈLES DE DÉPÔTS DE SOUFRE (ISDME)

Le projet international d'évaluation des modèles de dépôts de soufre, entrepris en 1985 et terminé en 1987, a été réalisé conjointement par l'Environmental Protection Agency des États-Unis et le Service de l'environnement atmosphérique du Canada. L'élaboration des modèles linéaires était essentiellement terminée au moment où le projet ISDME a eu lieu. Les initiatives subséquentes se sont penchées principalement sur l'effet de la non-linéarité sur le transport à grande distance. L'évaluation était restreinte à l'analyse des modèles linéaires en partie parce que les modèles non linéaires en cours d'élaboration à ce moment-là (ex. : RADM et ADOM) exigeaient un nombre beaucoup plus imposant de données météorologiques (ex. : diffusivité de la couverture de nuages, humidité, nombreux niveaux verticaux) que celui dont on disposait pour le projet ISDME.

Les paragraphes suivants sont tirés du résumé analytique du rapport sur le projet ISDME (Clark et al., 1987).

"Le projet ISDME a porté sur onze modèles de simulation de la chimie atmosphérique des dépôts de soufre pour chaque saison de l'année 1980. Ces modèles étaient des modèles statistiques, des modèles lagrangiens ou des hybrides. Le choix de l'année 1980 comme année de référence a été fondé, en partie, sur la disponibilité du plus récent inventaire des émissions." Le tableau 3.3.8 présente les onze modèles, leur nature et leurs liens.

"L'étude consistait i) à compiler et à distribuer aux modélisateurs des ensembles de données d'entrée normalisées, ii) à appliquer les onze modèles à ces ensembles de données et iii) à évaluer les modèles dans le cadre d'un test à l'aveugle, c'est-à-dire que le code machine de ces modèles n'était pas modifié spécialement pour améliorer les résultats obtenus pour 1980. Les données évaluées étaient les quantités de dépôts humides de soufre calculées à partir de données triées sur la chimie des précipitations provenant de cinq réseaux importants de l'Amérique du Nord et sur les concentrations atmosphériques quotidiennes d'anhydride sulfureux et de sulfates à quatre emplacements canadiens. Les données sur les dépôts secs n'étaient pas disponibles au cours de cette étude."

"Les modalités de tri et de calcul suivies au cours de l'ISDME étaient très semblables à celles qui ont été recommandées par le comité chargé de la base de données sur l'ensemble des dépôts (1985) établi par le Comité canadien de coordination de la recherche et de la surveillance et les responsables du programme national américain d'évaluation des précipitations acides (NAPAP). Le nombre d'emplacements dont les données répondaient aux critères de l'ISDME variaient entre 32, pour l'année, et 46, pour les périodes printanières."

Tableau 3.3.8

Modèles étudiés et participants à l'évaluation ISDME

Nom du modèle	Participant et affiliation	Type de modèle
Modèle de transport à grande distance du Service de l'Environnement Atmosphérique (AES)	Eva Volder et Marvin Olson Environment Canada	Lagrange
Advanced Statistical Trajectory Regional Air Pollution (ASTRAP)	Jack Shannon Argonne National Laboratory	Lagrange/ Statistique
Modèle de tranport à grande distance du Ministère de l'Environnement de l'Ontario (MOE)	Barbara Ley Ministère de l'Environnement de l'Ontario	Lagrange
Regional Impacts on Visibility and Acid Deposition (RIVAD) Model	Doug Latimer Systems Applications Inc.	Lagrange
Regional Lagrangian Model of Air Pollution (RELMAP)	Terry Clark US Environmental Protection Agency	Lagrange
Regional Transport Model (RTM-II)	Doug Latimer Systems Applications Inc.	Euler/ Lagrange
Statistical Estimates of Transport and Acidic Deposition (SERTAD) Model	Ron Portelli Concord Scientific Corp.	Statistique
Modèle statistique (STATMOD)*	Akula Venkatram Environmental Research and Technology Inc.	Statistique
Tennessee Valley Authority Model-T	William Norris Tennessee Valley Authority	Statistique
University of Michigan Atmospheric Contributions to Interregional Deposition (UMACID) Model	Perry Samson Université de Michigan	Lagrange

* Une seconde version du modèle SIMPMOD est aussi appliquée.

"Contrairement aux évaluations effectuées dans le passé, l'ISDME a mis l'accent sur la capacité des modèles à reproduire, dans les limites des incertitudes des données, les configurations spatiales des quantités annuelles et saisonnières de dépôts humides de soufre. On a effectué des évaluations saisonnières et annuelles plutôt que des évaluations uniquement saisonnières en vue de soumettre les modèles à des essais plus rigoureux. Les configurations ont été produites par l'interpolation, à l'intérieur d'une grille comportant des mailles de un demi-degré, des observations et des prévisions visant un emplacement à l'aide d'une technique appelée krigeage. Cette technique réduit au minimum les erreurs d'interpolation et quantifie les incertitudes découlant de cette dernière ainsi que les erreurs de mesure."

"L'accent a été placé sur la reproduction des configurations parce que les mesures ponctuelles ne sont pas nécessairement représentatives de la résolution spatiale des modèles. C'est-à-dire qu'une grande variabilité des paramètres météorologiques et des teneurs atmosphériques peut causer des effets "locaux" sur les mesures prises à un emplacement. Il en résulte que ces mesures peuvent être représentatives d'un point seulement et non pas d'une région. Il est donc nécessaire de comparer les prévisions et les observations à des échelles spatiales correspondantes. En outre, grâce à la comparaison des configurations, on obtient au moins une évaluation restreinte des modèles pour les régions où les données sont peu nombreuses."

"Le deuxième aspect unique de l'évaluation est la prise en compte des incertitudes liées aux quantités observées de dépôts humides de soufre. Au lieu de comparer les prévisions aux meilleures estimations des observations, on a déterminé si les prévisions dépassaient les limites d'incertitude des observations interpolées et, si oui, dans quelle mesure. D'après ces limites d'incertitude, la signification statistique des différences a été déterminée. Les incertitudes découlent des erreurs d'échantillonnage et d'analyse, des effets locaux et non régionaux, des différences dans les modalités suivies par les réseaux et de l'interpolation des valeurs prévues et observées. Les incertitudes liées aux configurations des dépôts humides de soufre ont varié entre ± 50 % dans la région où les dépôts étaient les plus élevés et ± 100 % dans toutes les régions de l'est de l'Amérique du Nord où les données étaient peu nombreuses."

"Les modèles ont été évalués à l'aide de six mesures de performance qui quantifiaient les différences entre les configurations prévues et observées des dépôts humides de soufre. La mesure à laquelle on a attribué le plus grand poids était le pourcentage de mailles de un demi-degré pour lequel les valeurs prévues différaient significativement des valeurs mesurées. On a attribué le même poids aux cinq autres mesures. Deux de ces mesures quantifiaient les différences dans la position des configurations, deux autres, les différences dans l'ordre de grandeur et l'emplacement des valeurs maximales. La dernière mesure quantifiait les différences dans la répartition saisonnière des quantités annuelles."

"La comparaison des configurations prévues et observées des dépôts humides saisonniers de soufre a révélé que les configurations prévues ont tendance à ressembler à des ellipses concentriques et à être moins détaillées que les configurations observées. Les configurations saisonnières et annuelless prévues ont également indiqué de façon constante que les quantités maximales se retrouvent à l'intérieur des régions de l'Ohio, de l'ouest de la Pennsylvanie et de la Virginie de l'Ouest, où les émissions sont importantes. Ce comportement n'a pas été décelé dans les configurations observées, lesquelless ont indiqué que l'endroit où se situent les quantités maximales n'est pas fixe mais qu'il se déplace du nord de la virginie de l'Ouest jusqu'au sud de l'Ontario."

"Selon le modèle, les distances qui séparaient l'emplacement des quantités maximales prévues et observées au cours de toutes les saisons variaient entre moins de 170 km et 350 km. La plupart des modèles ont donné des résultats qui se trouvaient dans les limites d'incertitude des valeurs maximales saisonnières et annuelles."

"La détermination des zones à l'intérieur desquelles les différences entre les prédictions et les observations étaient statistiquement significatives a révélé que pour 80 % de la région évaluée,

* les prévisions saisonnières de cinq des onze modèles se trouvaient à l'intérieur des limites d'incertitude des configurations saisonnières observées;

* les prévisions saisonnières de tous les modèles, sauf trois, se trouvaient à l'intérieur des mêmes limites d'incertitude dans le cas de trois saisons au moins;

* les prévisions annuelles de tous les modèles, sauf trois, se trouvaient à l'intérieur des limites d'incertitude de la configuration annuelle observée."

"L'un des facteurs qui a contribué à ce pourcentage élevé a été le degré d'incertitude de la configuration observée des dépôts humides de soufre qui atteignait ± 50 % dans toute la zone comprenant la plus grande densité d'emplacements. On a donc considéré un intervalle statistique de dispersion relativement large pour ce qui est des différences entre les modèles étudiés."

"En ce qui a trait aux fractions saisonnières des dépôts humides de soufre de 1980, près de 40 % des quantités annuelles observées se sont déposées au cours de l'été (juillet, août et septembre) et près de 30 % au cours du printemps (avril, mai et juin). Environ 15 % se sont déposés en hiver (janvier, février et mars) et le même pourcentage, en automne (octobre, novembre et décembre). La plupart des modèles ont prévu des fractions qui différaient par moins de 10 % de celles observées en été et au printemps et par moins de 25 % de celles observées en automne et en hiver. Trois modèles n'ont pas reproduit aussi bien que les autres la variabilité saisonnière observée."

"Au cours de l'utilisation des modèles, on a observé deux caractéristiques communes aux modèles statistiques mais pas aux autres modèles. Premièrement, les configurations des dépôts humides de soufre, tels que déterminés par les modèles statistiques, ont eu tendance à être orientées selon un axe est-ouest par opposition à l'axe sud-ouest-nord-est des configurations observées. Par contre, l'orientation des configurations prévues par les autres modèles a eu tendance à correspondre davantage à celle des configurations observées. Cette différence pourrait être due au fait que les modèles statistiques fondent leur simulation du transport sur les vents moyens saisonniers, lesquels ont tendance à être orientés d'ouest en est en Amérique du Nord, plutôt que sur les mesures des vents disponibles deux fois par jours. La seconde caractéristique commune aux modèles statistiques était la tendance à prévoir des teneurs atmosphériques en sulfates plus élevées que celles prévues par les modèles déterministes, tant aux emplacements évalués au cours du projet ISDME qu'aux quatre emplacements canadiens de surveillance." La figure 3.3.5 et les tableaux 3.3.9 à 3.3.12 présentent les résultats de l'évaluation saisonnière.

"Finalement, les performances saisonnières, annuelles et globales des modèles ont été résumées à l'aide de modalités de pointage et de regroupement fondées sur des valeurs critères déterminées subjectivement pour chacune des six mesures de performance. Un modèle recevait des points lorsque les valeurs des mesures de performance n'excédaient pas les valeurs critères. Les scores attribués pour la performance globale ont été fondés sur les scores de performance saisonnière pondérés. Les facteurs de pondération, dont la somme égale un, étaient déterminés par les fractions moyennes relatives des quantités saisonnières observées de dépôts humides de soufre. Par conséquent, on a attribué à la performance des modèles pour l'été, saison qui connaît la plus grande quantité de dépôts humides de soufre, un facteur de pondération de 0,4. D'après la répartition des scores de performance globale, il existe trois ensembles ou groupes distincts de modèles. On a jugé qu'un des modèles dont le score de performance globale s'inscrivait parmi les plus élevés avait fonctionné relativement bien, mais il avait utilisé un terme correctif (ou de fond) empirique qui était responsable de 40 à 60 % des dépôts humides de soufre prévus."

La dernière observation formulée dans le sommaire technique du rapport sur le projet ISDME souligne un aspect très important de la modélisation du transport à grande distance. Le fait que la corrélation avec les données observées est accrue, dans le cas d'un des modèles qui a le mieux fonctionné, par l'inclusion d'un terme de fond qui est fonction des précipitations souligne l'importance des données précises sur les précipitations pour la prévision des dépôts humides par les modèles. Dans la prochaine section, qui porte sur la performance d'un modèle exhaustif (non linéaire), nous constatons aussi que le choix des données sur les précipitations peut influer beaucoup sur la performance des modèles. Puisque les précipitations sont de nature épisodique et locale, la comparaison des résultats observés et prévus est difficile. S'il existait une façon précise de calculer la moyenne des précipitations ou d'en produire une estimation dans une superficie de la taille approximative d'une maille de la grille souvent utilisée

comme donnée d'entrée dans ces modèles (~ 100 km sur 100 km), alors la configuration globale des dépôts humides serait cernée. Cependant, ces résultats ne se compareraient pas nécessairement bien avec les observations, lesquelles dépendent des précipitations locales. Afin d'obtenir une bonne comparaison avec les observations, il faudrait utiliser les quantités de précipitations locales. Le conflit qui existe entre ces objectifs concurrentiels ne peut être résolu que par l'augmentation de la superficie de surveillance des dépôts humides.

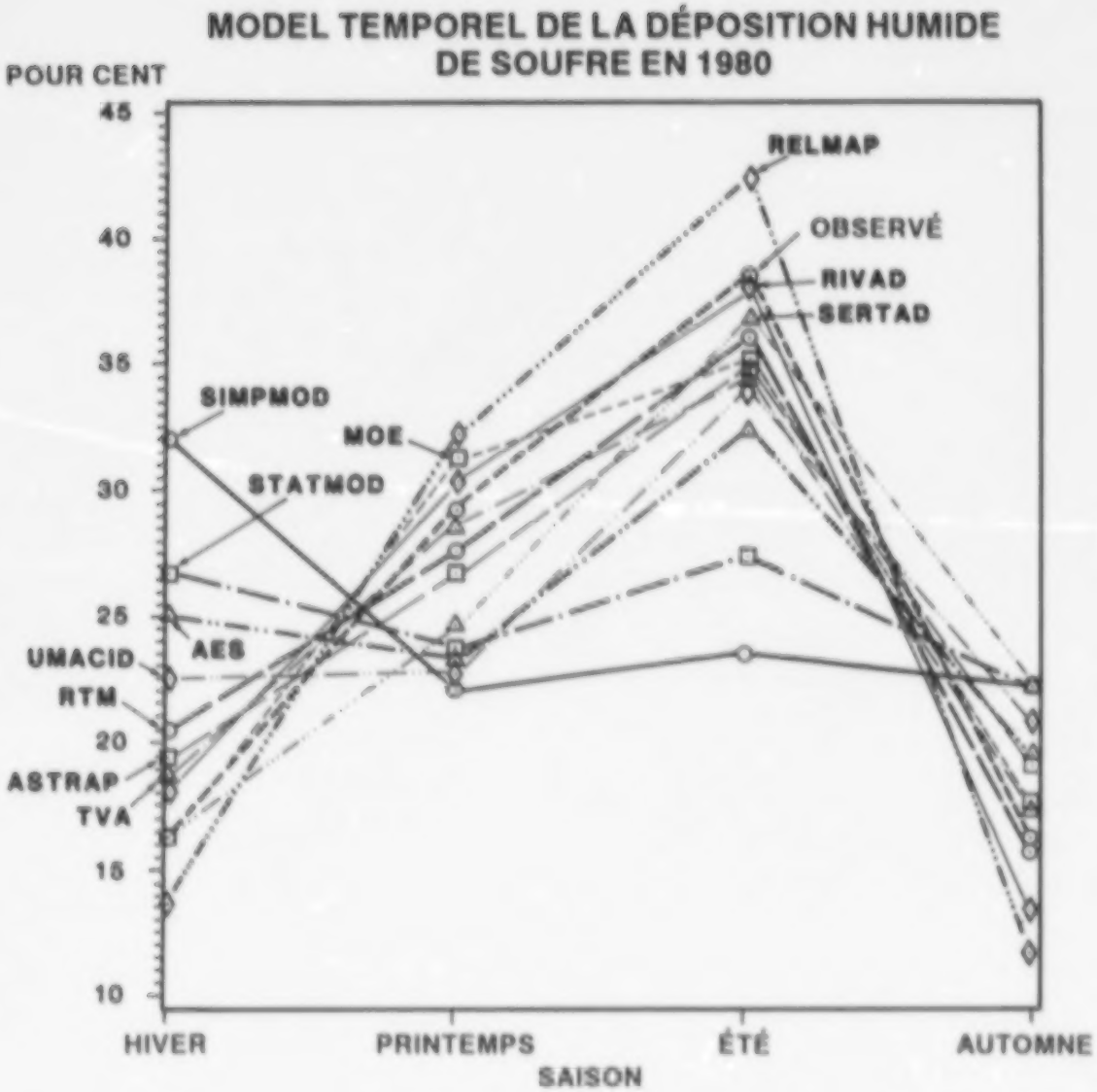


Figure 3.3.5 Pourcentage moyen des dépôts humides annuels observés et prévus par rapport à 1980 pour chaque saison à 30 emplacements utilisés dans le cadre de l'évaluation ISDME.

Tableau 3.3.9 Résumé des mesures de l'efficacité des modèles pour l'hiver 1980

	AES	AST	MOE	REL	RIV	RTM	SER	SIM	STA	TVA	UMA	OBS
I. Reproduction de la configuration spatiale												
A. Ordre de grandeur												
1. Superficie où les différences sont significatives (%)*												
a.Nord-Est	0.0	0.0	0.8-	0.0	0.8-	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	
b.Centre Nord	0.2+	11.5+	0.0	5.4-	31.2-	27.6-	0.7+	14.7+	3.4-	0.0	0.9-	
c.Sud-Ouest	41.2+	29.4+	0.0	5.3+	4.4-	2.6-	0.0	62.3+	33.3+	4.4+	1.8+	
d.Sud-Est	85.5+	52.6+	5.3-	50.7+	0.0	0.0	19.7+	96.7+	32.7+	13.2+	9.2+	
e.Toutes les 4 régions	20.7+	18.2+	0.9-	10.4+	13.8-	11.8-	3.0+	32.5+	11.7+	2.8+	2.1+	
2. Médiane (kg S/ha)	2.38	2.25	1.15	1.58	0.87	0.99	1.50	2.97	2.02	1.61	1.49	1.34
(valeur prédictive)**	0.009	0.000	0.097	0.477	0.004	0.009	0.477	0.000	0.235	0.477	0.477	
3. Dispersion (kg S/ha)	2.12	0.75	0.29	0.78	0.13	0.17	0.50	2.01	1.05	0.59	0.58	0.44
(valeur prédictive)**	0.000	0.064	0.113	0.052	0.000	0.003	0.359	0.000	0.007	0.203	0.212	
4. Biais-Maximum (kg S/ha)	-0.77	-1.06	0.18	-0.08	0.78	0.72	-0.12	-1.87	-0.22	-0.29	-0.02	
(valeur prédictive)**	0.03	0.00	0.18	0.38	0.00	0.00	0.29	0.00	0.25	0.13	0.46	
5. Biais-Minimum (kg S/ha)	-0.91	-0.48	0.44	-0.10	0.54	0.29	0.09	-1.08	-0.27	0.06	0.06	
(valeur prédictive)**	0.00	0.00	0.00	0.29	0.00	0.01	0.28	0.00	0.05	0.35	0.37	
6. Erreur moyenne au carré (kg S/ha)²	2.85	1.33	0.64	0.88	0.85	0.63	0.62	4.10	0.95	0.65	0.55	
B. Position												
1. Points médians (km)	146	43	82	144	66	112	42	81	151	32	87	
2. Axe principal (degrés)***	+5.3	+8.7	+13.3	+3.7	+10.2	+10.2	+9.4	+12.6	+20.1	+14.4	-0.1	37.5
3. Décalage (km)	704	492	245	704	641	737	467	467	660	397	592	
C. Forme												
1. Corrélation (sans décalage)	-0.17	0.03	0.36	-0.16	-0.06	-0.11	-0.18	-0.06	-0.02	0.11	0.08	
2. Corrélation (avec décalage)****	0.79	0.68	0.61	0.74	0.73	0.78	0.63	0.58	0.65	0.69	0.74	
II Valeurs maximales*****												
A. Endroit - Krigeage (km)	238	42	55	238	202	202	197	238	238	101	253	
B. Ordre de grandeur - Krigeage (%)***	+36	0	0	0	-25	-18	0	+38	0	0	0	
Ordre de grandeur - Emplacement (%)***	+59	+7	-19	0	-42	-37	0	+63	+1	0	0	
III Reproduction de la configuration temporelle												
A. Contribution saisonnière (%)	25.0	19.4	16.2	13.7	18.1	20.5	16.3	32.0	26.7	19.3	22.5	16.2
(pourcentage de différence)***	+54	+20	0	-15	+12	+27	+1	+98	+65	+19	+39	

Les mesures soulignées sont des mesures de performance primaires.

* "+" et "-" indiquent respectivement une prédominance de surestimations et de sous-estimations.

** La valeur prédictive est la probabilité que les différences se produisent par hasard.

*** Les valeurs énumérées pour chaque modèle représentent la valeur de la prévision moins la valeur de l'observation. Les différences en pour cent sont normalisées grâce aux valeurs observées.

**** La configuration modèle a déplacé pour produire le plus possible corrélation avec observation.

***** Krigeage était utilisé pour attendre maximum endroit et grandeur.

Tableau 3.3.10 Résumé des mesures de l'efficacité des modèles pour l'automne 1980

	AES	AST	MOE	REL	RIV	RTM	SER	SIM	STA	TVA	UMA	OBS
I. Reproduction de la configuration spatiale												
A. Ordre de grandeur												
1. Superficie où les différences sont significatives (%)*												
a.Nord-Est	1.5+	1.5+	9.8-	0.0	21.4-	0.0	10.5+	0.0	0.0	13.2-	0.0	
b.Centre Nord	9.5+	14.9+	0.0	4.1-	23.8-	18.8-	14.0+	3.2+	0.2-	0.0	0.0	
c.Sud-Ouest	0.0	11.0+	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	18.4+	0.0	2.6+	0.0	
d.Sud-Est	63.8+	53.9+	0.0	7.9+	0.0	0.0	13.8+	78.9+	14.5+	10.5+	2.6+	
e.Toutes les 4 régions	13.1+	16.3+	2.4-	2.8	14.9-	7.6-	10.2+	16.2+	2.1+	5.2	0.4+	
2. Médiane (kg S/ha)	1.92	2.24	1.15	1.36	0.59	0.76	2.04	2.03	1.33	1.40	1.17	1.28
(valeur prédictive)**	0.006	0.000	0.254	0.649	0.000	0.000	0.000	0.000	0.649	0.649	0.362	
3. Dispersion (kg S/ha)	0.46	0.62	0.22	0.38	0.03	0.03	0.28	0.86	0.37	0.40	0.36	0.41
(valeur prédictive)**	0.353	0.097	0.029	0.412	0.000	0.000	0.127	0.011	0.408	0.477	0.349	
4. Biais-Maximum (kg S/ha)	-0.15	-1.02	0.13	0.38	1.04	1.00	-0.54	-0.76	0.09	-0.06	-0.01	
(valeur prédictive)**	0.24	0.00	0.25	0.07	0.00	0.00	0.00	0.02	0.37	0.42	0.49	
5. Biais-Minimum (kg S/ha)	-0.46	-0.56	0.24	-0.10	0.59	0.42	-0.76	-0.50	0.03	0.09	0.21	
(valeur prédictive)**	0.01	0.00	0.03	0.26	0.00	0.00	0.00	0.02	0.42	0.29	0.10	
6. Erreur moyenne au carré (kg S/ha)^2	1.03	1.39	0.51	0.76	0.98	0.80	0.81	1.76	0.79	0.82	0.46	
B. Position												
1. Points médians (km)	139	65	71	182	71	97	65	126	147	99	38	
2. Axe principal (degrés)***	+7.3	+16.6	+18.2	+3.3	+12.2	+8.6	+13.3	+20.7	+23.2	+21.0	+8.7	29.0
3. Décalage (km)	660	440	330	592	347	934	246	454	592	440	453	
C. Forme												
1. Corrélation (sans décalage)	-0.39	0.37	0.59	-0.58	0.17	-0.19	0.54	-0.43	-0.50	-0.26	0.30	
2. Corrélation (avec décalage)****	0.55	0.81	0.86	0.61	0.78	0.20	0.71	0.83	0.74	0.89	0.88	
II Valeurs maximales*****												
A. Endroit-Krigeage (km)	338	183	164	338	315	135	0	338	285	338	338	
B. Ordre de grandeur-Krigeage (%)***	0	0	0	0	-52	-42	0	0	0	0	0	
Ordre de grandeur-Emplacement (%)***	0	+1	-24	0	-68	-61	0	+18	0	0	0	
III Reproduction de la configuration temporelle												
A. Contribution saisonnière (%)	19.4	19.1	17.5	11.7	13.4	15.5	22.2	22.2	22.3	17.3	20.7	16.0
(Pourcentage de différence)***	+21	+19	+9	-27	-16	-3	+39	+39	+39	+8	+29	

Les mesures soulignées sont des mesures de performance primaires.

* "+"et "-" indiquent respectivement une prédominance de surestimations et de sous-estimations.

** La valeur prédictive est la probabilité que les différences se produisent par hasard.

*** Les valeurs énumérées pour chaque modèle représentent la valeur de la prévision moins la valeur de l'observation. Les différences en pour cent sont normalisées grâce aux valeurs observées.

**** La configuration modelé a déplacé pour produire la plus possible corrélation avec observation.

***** Krigeage était utilisé pour atteindre maximum endroit et grandeur.

Tableau 3.3.11 Résumé des mesures de l'efficacité des modèles pour le printemps 1980

	AES	AST	MOE	REL	RIV	RTM	SER	SIM	STA	TVA	UMA	OBS
I. Reproduction de la configuration spatiale												
A. Ordre de grandeur												
1. Superficie où les différences sont significatives (%)*												
a.Nord-Est	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.4-	0.0	0.0	1.9-	0.0	2.3-	
b.Centre Nord	0.5-	1.8+	0.0	1.4+	16.1-	39.1-	0.0	0.0	33.0-	0.0	12.9-	
c.Sud-Ouest	0.0	0.0	0.0	14.0+	57.5-	64.0-	0.0	0.0	1.8-	0.0	32.0-	
d.Sud-Est	0.0	20.4+	0.0	59.9+	25.7-	27.6-	0.0	0.0	0.0	0.0	3.3-	
e.Toutes les 4 régions	0.2-	3.6+	0.0	11.9+	22.2-	33.3-	0.0	0.0	14.2-	0.0	13.0-	
2. Mediane (kg S/ha)	2.20	3.00	2.13	3.07	1.40	1.33	2.33	2.15	1.60	2.25	1.34	2.83
(valeur prédictive)**	0.124	0.510	0.048	0.272	0.000	0.000	0.079	0.124	0.000	0.124	0.000	
3. Dispersion (kg S/ha)	0.80	1.53	0.90	5.5	0.15	0.10	0.53	0.90	0.76	1.11	0.67	0.92
(valeur prédictive)**	0.316	0.055	0.456	0.000	0.000	0.000	0.038	0.461	0.268	0.285	0.154	
4. Biais-Maximum (kg S/ha)	0.76	-0.37	0.55	-1.39	1.77	1.93	0.64	0.72	1.33	0.42	1.44	
(valeur prédictive)**	0.00	0.10	0.01	0.02	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.03	0.00	
5. Biais-Minimum (kg S/ha)	0.49	-0.09	0.68	-0.51	1.03	1.05	0.21	0.45	0.91	0.46	1.22	
(valeur prédictive)**	0.00	0.32	0.00	0.05	0.00	0.00	0.05	0.00	0.00	0.00	0.00	
6. Erreur moyenne au carré (kg S/ha)^2	0.93	1.23	1.00	4.32	2.34	2.52	0.65	0.89	1.64	0.77	2.13	
B. Position												
1. Points médians (km)	51	68	66	82	30	25	16	72	84	46	30	
2. Axe principal (degrés)***	-2.6	-3.1	-0.3	-0.5	-2.2	-2.5	-1.3	-1.6	+7.2	-0.3	+0.2	51.9
3. Décalage (km)	347	440	110	156	220	550	110	156	110	156	116	
C. Forme												
1. Corrélation (sans décalage)	0.46	0.52	0.77	0.52	0.69	0.57	0.74	0.51	0.65	0.66	0.80	
2. Corrélation (avec décalage)****	0.70	0.73	0.79	0.68	0.76	0.74	0.76	0.71	0.67	0.78	0.83	
II Valeurs maximales*****												
A. Endroit-Krigeage (km)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	
B. Ordre de grandeur-Krigeage (%)***	0	0	0	+55	-35	-33	0	0	0	0	0	
Ordre de grandeur-Emplacement (%)***	-7	0	-9	+98	-55	-53	-11	0	-17	0	-27	
III Reproduction de la configuration temporelle	23.2	26.7	31.2	32.1	30.4	27.7	24.7	22.1	23.7	28.6	22.7	29.3
A. Contribution saisonnière (%)	-21	-9	+6	+10	+4	-5	-16	-25	-19	-2	-23	
(Pourcentage de différence)***												

Les mesures soulignées sont des mesures de performance primaires.

* "+"et "-" indiquent respectivement une prédominance de surestimations et de sous-estimations.

** La valeur prédictive est la probabilité que les différences se produisent par hasard.

*** Les valeurs énumérées pour chaque modèle représentent la valeur de la prévision moins la valeur de l'observation. Les différences en pour cent sont normalisées grâce aux valeurs observées.

**** La configuration modelé a déplacé pour produire la plus possible corrélation avec observation.

***** Krigeage était utilisé pour atteindre maximum endroit et grandeur.

Tableau 3.3.12 Résumé des mesures de l'efficacité des modèles pour l'été 1980

	AES	AST	MOE	REL	RIV	RTM	SER	SIM	STA	TVA	UMA	OBS
I. Reproduction de la configuration spatiale												
A. Ordre de grandeur												
1. Superficie où les différences sont significatives (%)*												
a.Nord-Est	16.9-	1.1-	17.7-	7.5-	26.3-	22.9-	0.4-	29.3-	37.6-	22.3-	27.1-	
b.Centre Nord	4.3-	6.4+	10.0-	5.9+	42.8-	48.0-	3.2+	38.7-	54.8-	16.3-	16.3-	
c.Sud-Ouest	14.5-	4.9+	17.1-	32.9+	46.5-	46.9-	4.4-	31.1-	29.8-	10.9-	31.1-	
d.Sud-Est	3.9+	48.7+	3.3-	90.1+	27.0-	26.3-	3.9+	3.3+	11.2-	2.0+	0.7	
e.Toutes les 4 régions	9.4-	10.6+	12.4-	23.7+	37.3-	38.6-	2.9	29.9-	39.2-	14.9-	20.0-	
2. Médiane (kg S/ha)	2.97	3.43	2.18	4.49	1.70	1.57	3.31	2.13	1.51	2.80	1.66	3.00
(valeur prédictive)**	0.826	0.510	0.048	0.016	0.000	0.000	0.510	0.048	0.004	0.826	0.048	
3. Dispersion (kg S/ha)	1.63	4.33	1.28	12.07	0.25	0.20	1.11	1.12	0.98	1.83	1.50	2.71
(valeur prédictive)**	0.055	0.069	0.009	0.000	0.010	0.000	0.003	0.003	0.001	0.105	0.031	
4. Biais-Maximum (kg S/ha)	0.91	-0.84	1.24	-2.01	2.50	2.60	0.40	1.88	2.28	0.87	1.66	
(valeur prédictive)**	0.01	0.04	0.00	0.03	0.00	0.00	0.13	0.00	0.00	0.02	0.00	
5. Biais-Minimum (kg S/ha)	0.10	-0.25	0.67	-1.07	0.91	0.92	-0.60	0.61	0.99	0.30	1.04	
(valeur prédictive)**	0.33	0.17	0.00	0.02	0.00	0.00	0.00	0.01	0.00	0.11	0.00	
6. Erreur moyenne au carré (kg S/ha)^2	1.98	2.71	2.01	11.6	4.11	4.16	1.41	3.41	3.98	2.17	3.23	
B. Position												
1. Points médians (km)	100	63	51	147	33	54	10	127	92	94	42	
2. Axe principal (degrés)***	+2.8	+8.5	+11.7	+10.3	+6.8	+6.2	+14.6	+13.4	+19.6	+12.5	-0.6	40.5
3. Décalage (km)	190	220	156	348	220	141	190	453	110	245	156	
C. Forme												
1. Corrélation (sans décalage)	0.56	0.68	0.77	0.38	0.81	0.80	0.75	0.30	0.64	0.54	0.74	
2. Corrélation (avec décalage)****	0.88	0.83	0.84	0.71	0.88	0.89	0.88	0.58	0.67	0.74	0.85	
II Valeurs maximales*****												
A. Endroit-Krigeage (km)	277	351	84	277	84	84	263	259	164	84	277	
B. Ordre de grandeur-Krigeage (%)***	-9	+1	-34	+85	-60	-59	-18	-32	-42	-14	-30	
Ordre de grandeur-Emplacement (%)***	-2	+1	-31	+89	-59	-56	-16	-27	-39	-7	-27	
III Reproduction de la configuration temporelle												
A. Contribution saisonnière (%)	32.4	34.8	35.1	42.5	38.1	36.2	36.9	23.6	27.4	34.8	34.1	38.5
(Pourcentage de différence)***	-16	-10	-9	+10	-1	-6	-4	-39	-29	-10	-11	

Les mesures soulignées sont des mesures de performance primaires.

* "+"et "-" indiquent respectivement une prédominance de surestimations et de sous-estimations.

** La valeur prédictive est la probabilité que les différences se produisent par hasard.

*** Les valeurs énumérées pour chaque modèle représentent la valeur de la prévision moins la valeur de l'observation. Les différences en pour cent sont normalisées grâce aux valeurs observées.

**** La configuration modelé a déplacé pour produire la plus possible corrélation avec observation.

***** Krigeage était utilisé pour atteindre maximum endroit et grandeur.

3.3.4.e UTILISATION ACTUELLE OU FUTURE DES "MODÈLES LINÉAIRES"

Bien qu'il ne reste plus beaucoup de travaux d'élaboration à effectuer sur les modèles linéaires de transport à grande distance, ces derniers peuvent encore jouer un rôle dans l'évaluation de la réduction des émissions. Les modèles lagrangiens ont des exigences d'entrée de données météorologiques qui sont substantiellement moindres que celles des modèles exhaustifs. En outre, ils nécessitent beaucoup moins de ressources informatiques pour la modélisation de cas de base et, notamment, de scénarios que les modèles exhaustifs. Par conséquent, les modèles lagrangiens correspondants peuvent être utilisés pour évaluer la variabilité météorologique des champs des dépôts et ceux des concentrations sur de longues périodes (de 1 à 5 ans). La meilleure façon d'exprimer cette variabilité est d'utiliser les changements en pourcentage par rapport à un cas de base pour réduire l'importance de la précision absolue des résultats des modèles.

Selon les résultats finals de la détermination du degré de non-linéarité du système par les modèles exhaustifs eulériens, les modèles lagrangiens peuvent également être utilisés pour évaluer la réduction des émissions. Lorsque l'ensemble des dépôts (secs plus humides) constituent un système presque linéaire, ces modèles peuvent alors être utilisés directement pour prévoir des scénarios détaillés de réduction des émissions. Même si le système est quelque peu non linéaire, il reste qu'il est possible d'utiliser les modèles exhaustifs pour élaborer des relations moyennes entre le total des émissions et la réduction des dépôts. Ces relations peuvent varier en fonction de la saison et de la superficie géographique. Les résultats des modèles lagrangiens pourraient alors être ramenés à une échelle correspondant à ces relations au moment de modéliser des scénarios détaillés des émissions. Les modèles lagrangiens calculeraient les intervalles de réduction des dépôts humides et secs auxquels on pourrait s'attendre d'année en année suite à une réduction particulière des émissions. Cette information pourrait ensuite être utilisée pour l'évaluation des résultats de surveillance dans une région. Il serait possible d'utiliser encore les résultats des modèles exhaustifs eulériens obtenus pour certains épisodes afin d'obtenir une indication de la variabilité à court terme et de déterminer si les relations source-récepteur établies d'après les résultats du modèle lagrangien s'appliquent aux réductions des émissions considérées.

3.3.5. MODÈLES EULÉRIENS NON LINÉAIRES

Même si des efforts ont été déployés pour inclure des aspects chimiques complexes dans les modèles lagrangiens (Eliassen et al., 1982, Botennheim et al., 1984), ces derniers ne conviennent pas bien aux situations comportant des sources multiples, car la chimie est fonction des concentrations atmosphériques globales plutôt que des concentrations dues à des sources individuelles ou des groupes de sources. Il est possible d'utiliser les modèles lagrangiens tenant compte d'une chimie complexe pour suivre l'évolution des panaches provenant de sources importantes.

Dans les situations comportant des sources multiples, un modèle eulérien se prête mieux à la modélisation exhaustive des dépôts acides ou des oxydants. Les deux modèles exhaustifs utilisés en Amérique du Nord sont RADM (Regional Acid Deposition Model) et ADOM (Acid Deposition and Oxidants Model). Les modules chimiques de ces deux modèles ont été condensés à partir de schémas chimiques détaillés. On a pris soin de s'assurer que l'essence du comportement des composés importants était représentée dans les schémas condensés et on a effectué des comparaisons entre les modules chimiques utilisés par ADOM et RADM. Bien que les deux modules aient été élaborés de façon distincte et que deux schémas différents aient été utilisés pour représenter globalement les composés organiques, les comparaisons effectuées dans le cas de l'ozone, de l'acide nitrique, du peroxyde d'hydrogène et des teneurs maximales en sulfates calculées pour 100 simulations différentes échelonnées sur plusieurs jours montrent une dispersion très faible. Le coefficient de détermination R^2 est toujours supérieur à 0,97. Sauf dans le cas du H_2O_2, où les prévisions du modèle RADM sont systématiquement inférieures d'environ 28 % à celles du modèle ADOM, toutes les autres comparaisons entre les composés montrent un biais systématique de moins de 10 %. Dans la présente section du rapport, nous décrirons brièvement l'évaluation du modèle ADOM effectuée à l'aide de quatre ensembles de données météorologiques.

Les modèles ont été utilisés pour 1) une période de 20 jours en avril 1981 (au cours d'expériences avec OSCAR); 2) une période de 44 jours au cours de l'expérience avec ANATEX tenue en janvier et en février 1987; 3) un épisode de teneurs très élevées en ozone qui a duré 9 jours en juin 1983; et 4) une étude hivernale de 10 jours en janvier et février 1985. On a examiné les résultats des modèles obtenus pour 3 des 4 saisons dans diverses conditions météorologiques.

3.3.5.a BRÈVE DESCRIPTION DU MODÈLE ADOM

Venkatram et al. (1988) et Misra et al. (1989) donnent une brève description du modèle ADOM, et des détails sur les modules sont présentés dans l'ERT (1984-1985). Le modèle utilise 12 niveaux verticaux qui s'étendent jusqu'à 10 km et sa grille est constituée de 33×33 mailles tel qu'il est illustré dans la figure 3.3.6 ou de 37×38 mailles pour les simulations du modèle ANATEX; ces mailles sont carrées et mesurent 127 km de côté. Les données météorologiques d'entrée consistent en des champs de vents horizontaux et verticaux, la diffusion tourbillonnaire, la température, l'humidité, les précipitations de surface ainsi que des données sur les nuages. Ces données sont dérivées de façon diagnostique à l'aide du modèle de prévision météorologique spectrale du Centre Météorologique Canadien, lequel effectue une interpolation dynamique et produit des données suivant des étapes d'une heure à partir des champs dynamiques observés.

La liste des modules que comprend ADOM est présentée ci-dessous. Il utilise un flux centré dans une maille pour l'advection et la diffusion. Le module de la chimie en phase gazeuse du soufre, de l'azote et des oxydants tient compte de 50 composés qui participent à environ 100 réactions. Les émissions de SO_2, de $SO_4^=$, de NO_x, de NH_3 et

de 10 catégories d'HCR servent de données d'entrée. La figure 3.3.6 présente les taux des émissions de SO_2 pour chaque grille. Le modèle ADOM utilise des modules de nuages stratiformes et cumuliformes pour les processus de lessivage humide et de mélange des nuages. Les champs des nuages et des précipitations sont tirés d'une combinaison de données observées et de résultats diagnostiques du modèle de prévision météorologique spectrale du Centre météorologique canadien. La chimie en phase aqueuse comprend 25 réactions entre 13 composés contenus dans l'air et dans l'eau. Finalement, les dépôts secs sont modélisés à l'aide d'une vitesse de formation des dépôts calculée comme l'inverse de la somme des résistances aérodynamiques de la couche des dépôts et de la surface du couvert.

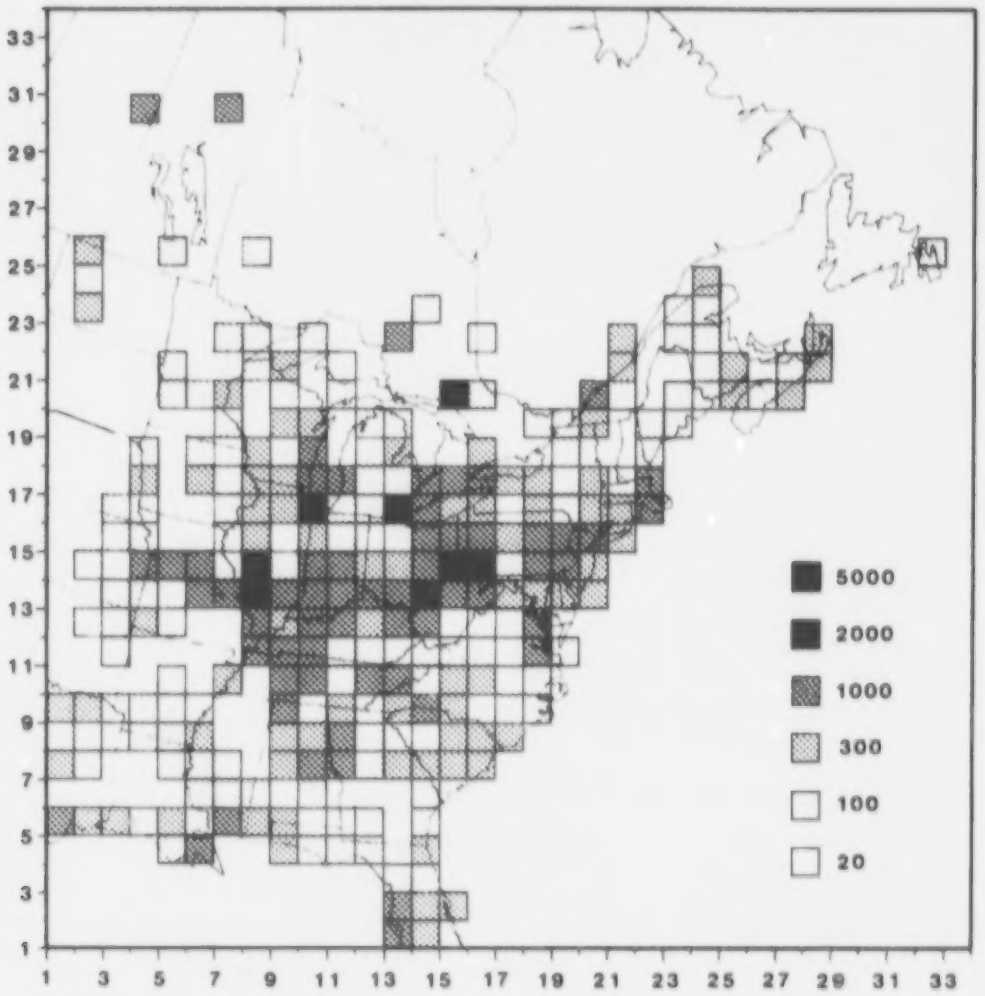


Figure 3.3.6 Taux de toutes les émissions de SO_2 (en tonnes métriques par jour) au cours du printemps dans chaque grille du modèle ADOM (127 km sur 127 km).

3.3.5.b UTILISATIONS DU MODÈLE OSCAR

Le modèle a été utilisé du 10 au 29 avril 1981 au cours de l'expérience sur le terrain effectuée pour OSCAR. La figure 3.3.7 présente les précipitations totales au cours de la période de 20 jours, soit une série de perturbations frontales que l'on a suivie dans tout le nord des États-Unis et le sud du Canada. Dans la moitié ouest du domaine, les averses ont dominé, et dans l'est, un mélange de bruine, de pluie et d'averses. Au cours des 20 jours, plus de 120 mm de pluie sont tombés au sud du lac Michigan.

On disposait des concentrations quotidiennes moyennes de $SO_4^=$ observées à 34 emplacements du nord-est des États-Unis et du sud de l'Ontario pour 5 jours au cours de cette période. La figure 3.3.8 présente un graphique en nuage de points des concentrations modélisées et observées de SO_4^{2-} dans les précipitations dont la moyenne a été calculée sur 5 jours pour deux épisodes différents. La moyenne résultant du modèle était de 20 % inférieure à la moyenne observée, mais environ 70 % et 80 % des résultats de la modélisation ne différaient des observations que par un facteur inférieur à 2, dans le cas d'OSCAR II et IV, respectivement. Étant donné les erreurs possibles dans les données d'entrée sur les émissions de NH_3 et le fait qu'une moyenne modélisée à l'échelle d'une grille est comparée à des données ponctuelles, ces résultats sont très encourageants. Un graphique semblable des résultats du modèle pour ce qui est des nitrates dans les précipitations (figure 3.3.9) révèle une légère sous-estimation.

Les figures 3.3.10 et 3.3.11 montrent les flux de dépôts humides moyens de SO_4^{2-} calculés sur 16 jours obtenus grâce à un modèle lagrangien tenant compte d'une chimie linéaire et grâce à ADOM, respectivement (Ellenton et al., 1988). Les positions des valeurs maximales étaient très semblables pour les deux modèles. Dans l'ensemble, le modèle lagrangien a produit de plus forts dépôts de sulfates bien que ce soit dû en partie à la considération par le modèle de dépôts de fond de 67 $\mu g\ m^{-2}\ h^{-1}$. Les résultats du modèle ADOM indiquent que davantage de dépôts se produisent au large de la côte est. Puisque le modèle lagrangien ne comprenait pas de données d'entrée sur les précipitations marines, cette différence n'est pas surprenante. En raison des restrictions liées aux données d'entrée, les pourcentages de changement par rapport aux dépôts de base constituent un champ plus fiable que les changements absolus dans les dépôts.

La réponse des deux modèles aux réductions des émissions est tout à fait différente. Le modèle lagrangien suppose que les dépôts diminuent au même taux que les émissions (même si les dépôts de fond demeurent inchangés). La figure 3.3.12 présente les pourcentages de changement dans les dépôts humides moyens de sulfates calculés sur 20 jours résultant d'une réduction de 50 % des émissions de SO_2 dans tout le domaine considéré par ADOM. Dans la zone principale de formation des dépôts (pour laquelle les effets des valeurs frontières ne sont pas considérés), les réductions varient entre 30 % et 45 %, et les valeurs les plus faibles sont situées près de la région source principale. Un modèle lagrangien qui tient compte d'une chimie linéaire pourrait bien modéliser les conditions existantes mais il ne produirait pas nécessairement la bonne solution dans le cas d'un scénario de réduction des émissions.

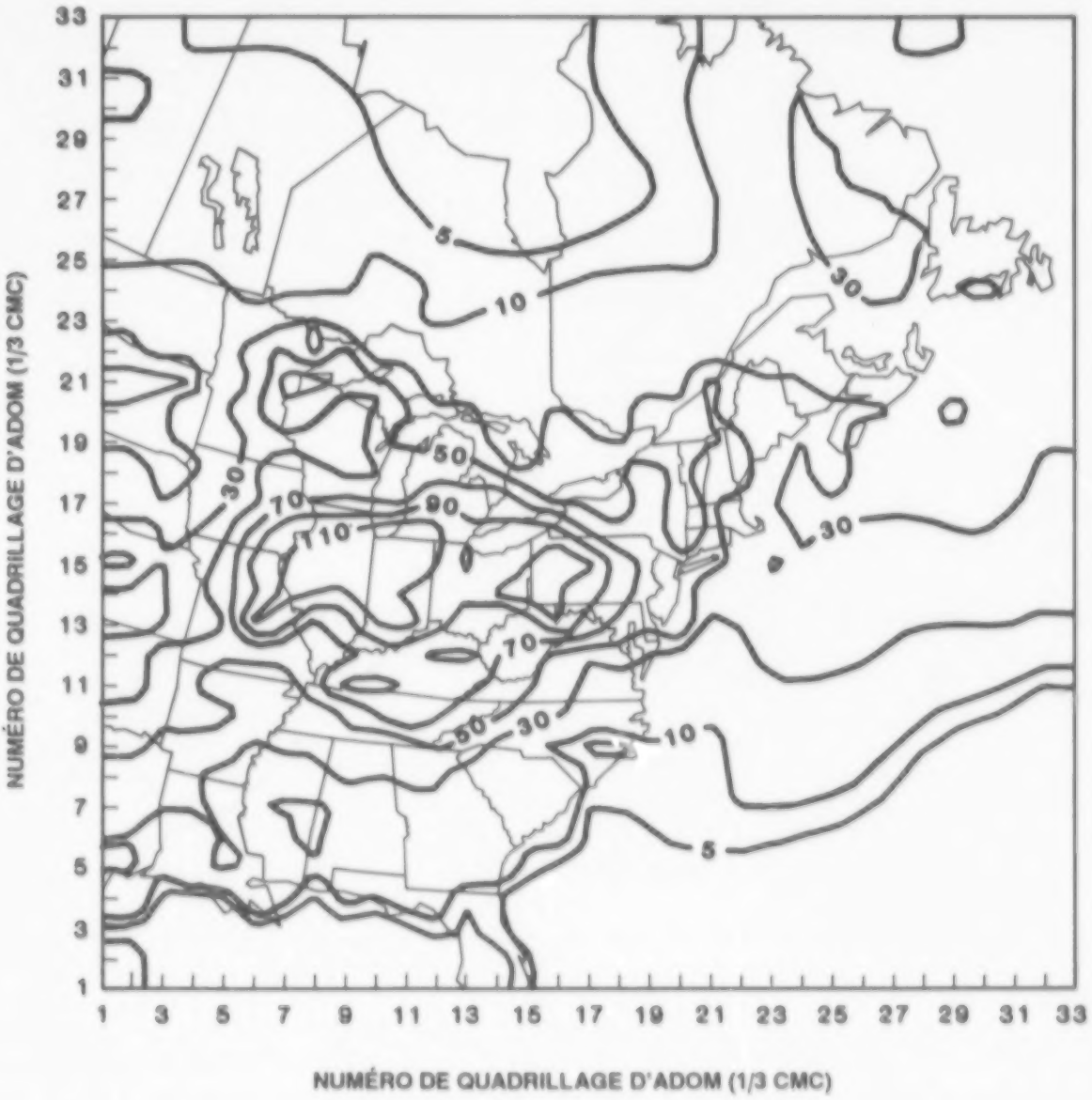


Figure 3.3.7 Quantité totale de précipitations (mm) au cours d'OSCAR II, III ET IV (du 10 au 29 avril 1981) représentée à l'intérieur du domaine utilisé pour ADOM.

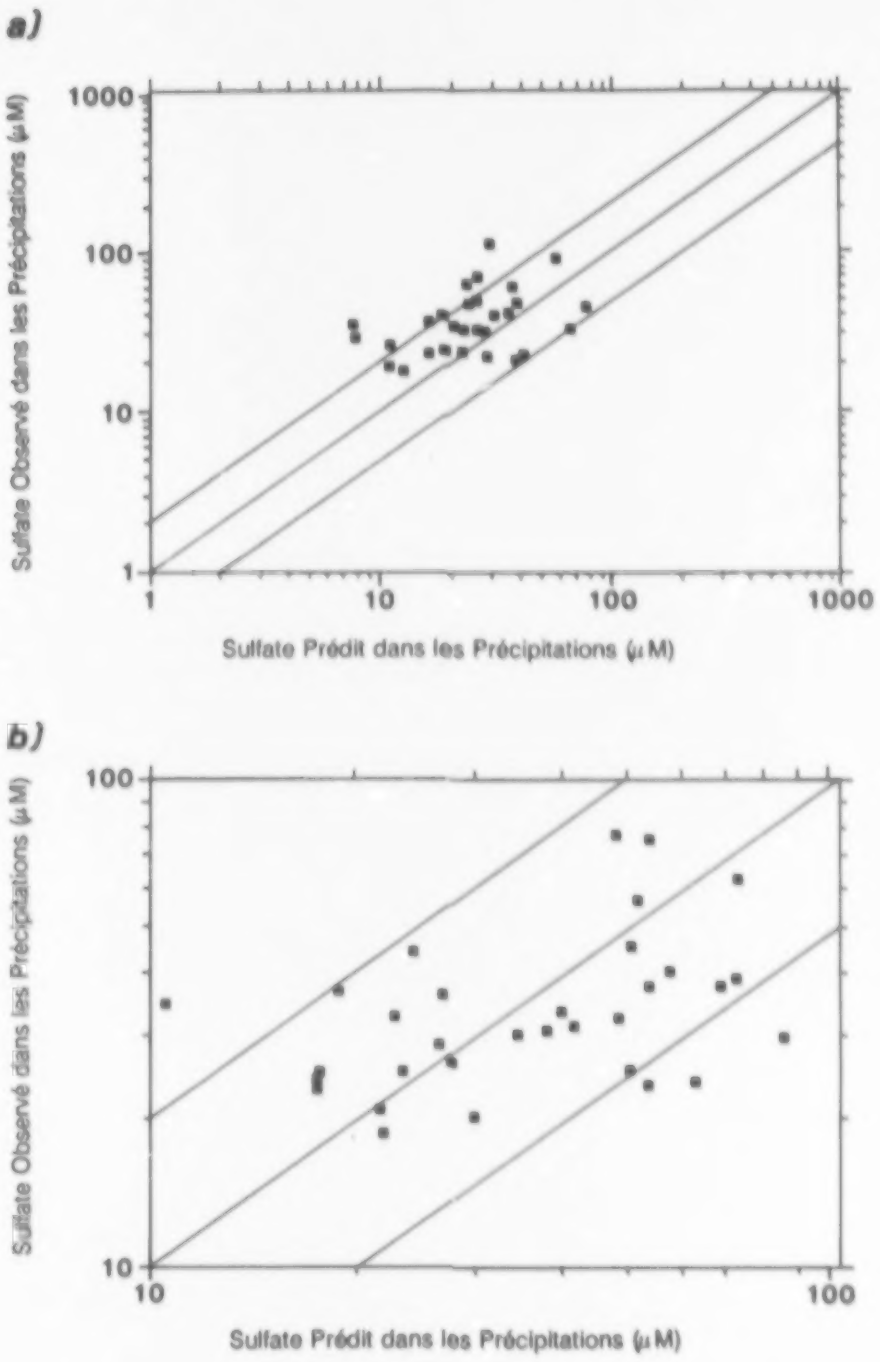


Figure 3.3.8

a) Concentrations des $SO_4^=$ dans les précipitations selon OSCAR II (nouveau module de lessivage).

b) Concentrations des $SO_4^=$ dans les précipitations selon OSCAR IV (nouveau module de lessivage).

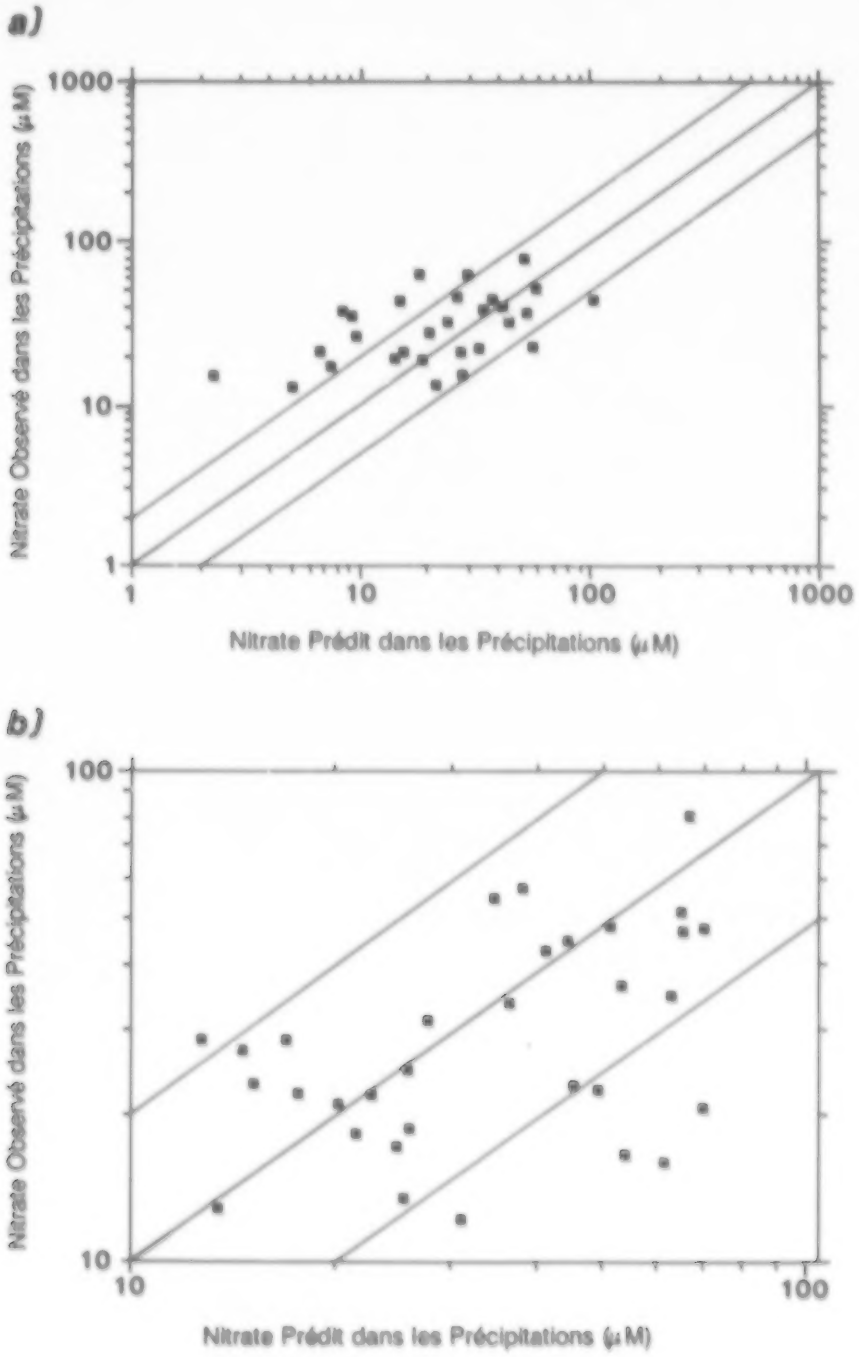


Figure 3.3.9

a) Concentrations des nitrates dans les précipitations selon OSCAR II (nouveau module de lessivage).

b) Concentrations des nitrates dans les précipitations selon OSCAR IV (nouveau module de lessivage).

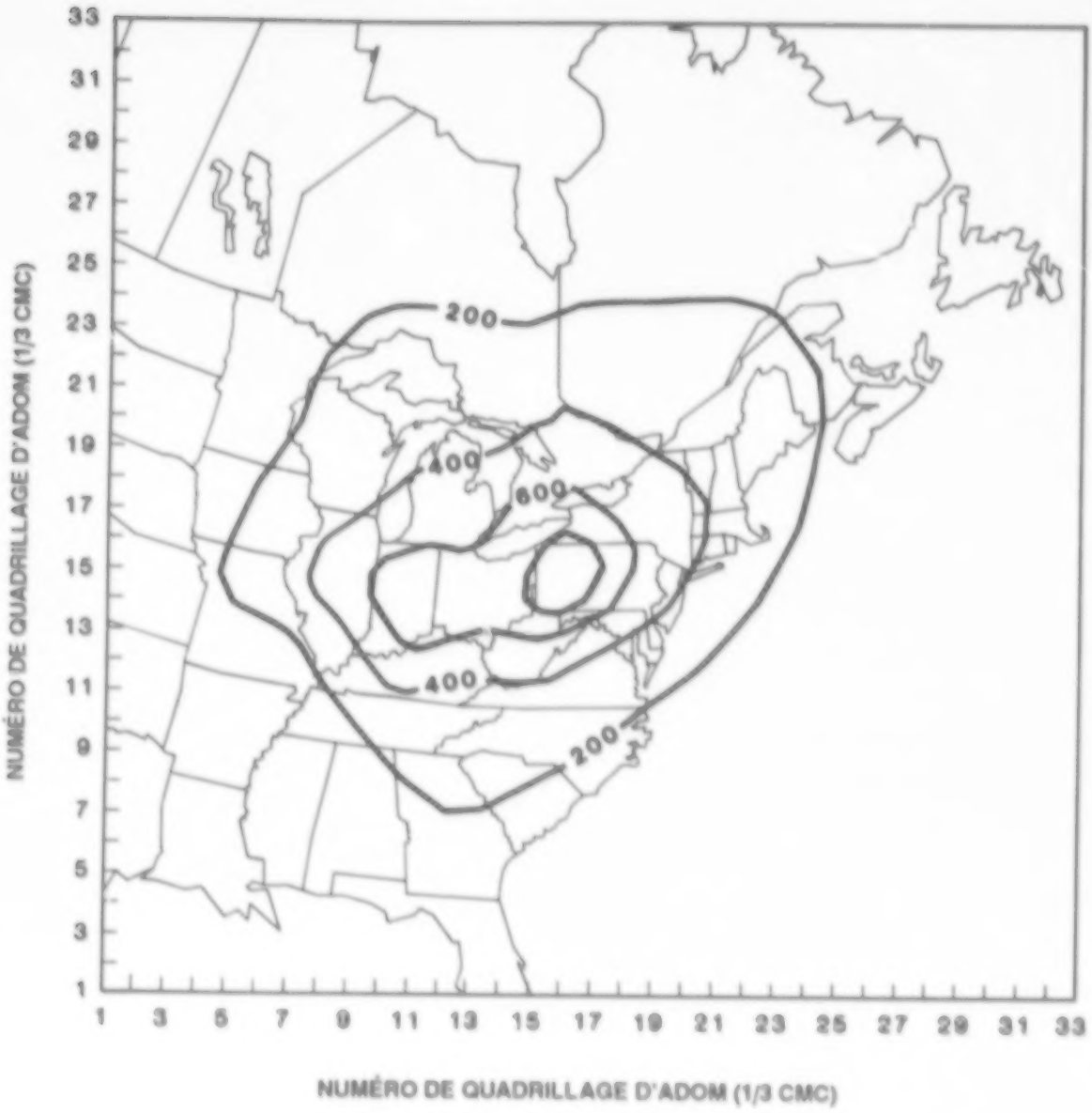


Figure 3.3.10 Moyenne calculée sur 16 jours (du 10 au 25 avril 1981) du flux des dépôts humides ($\mu g\ m^{-2}\ h^{-1}$) de $SO_4^=$ prévu par le modèle de Lagrange. Cette moyenne est donnée pour le domaine des grilles de l'ADOM. Un dépôt de fond de 67 $\mu g\ m^{-2}\ h^{-1}$ est ajouté au résultat du modèle pour tenir compte des contributions non anthropiques et de celles qui proviennent de l'extérieur du domaine.

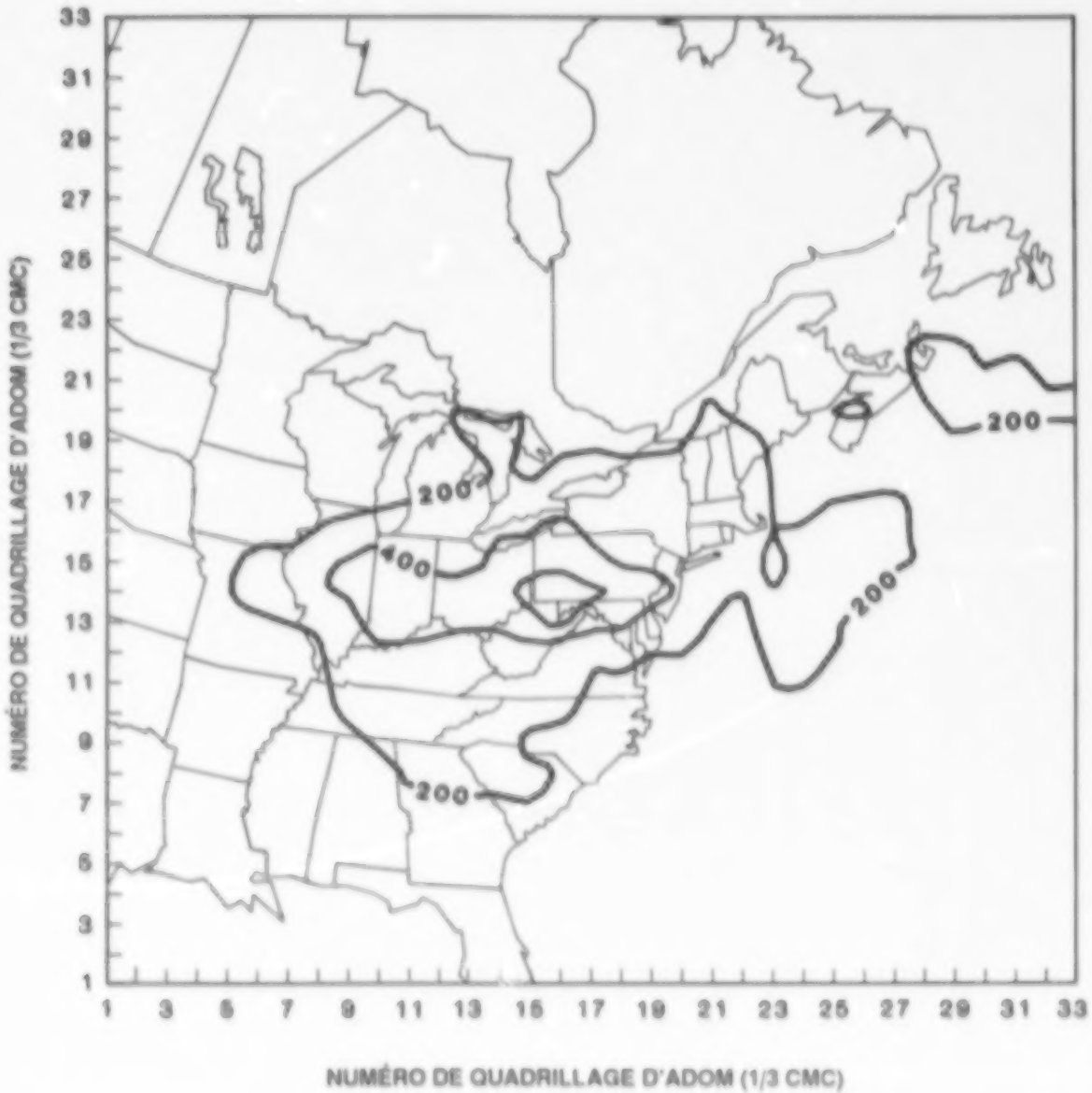


Figure 3.3.11 Moyenne calculée sur 16 jours (du 10 au 25 avril 1981) du flux des dépôts humides ($\mu g\ m^{-2}\ h^{-1}$) de $SO_4^=$ prévu par le modèle ADOM.

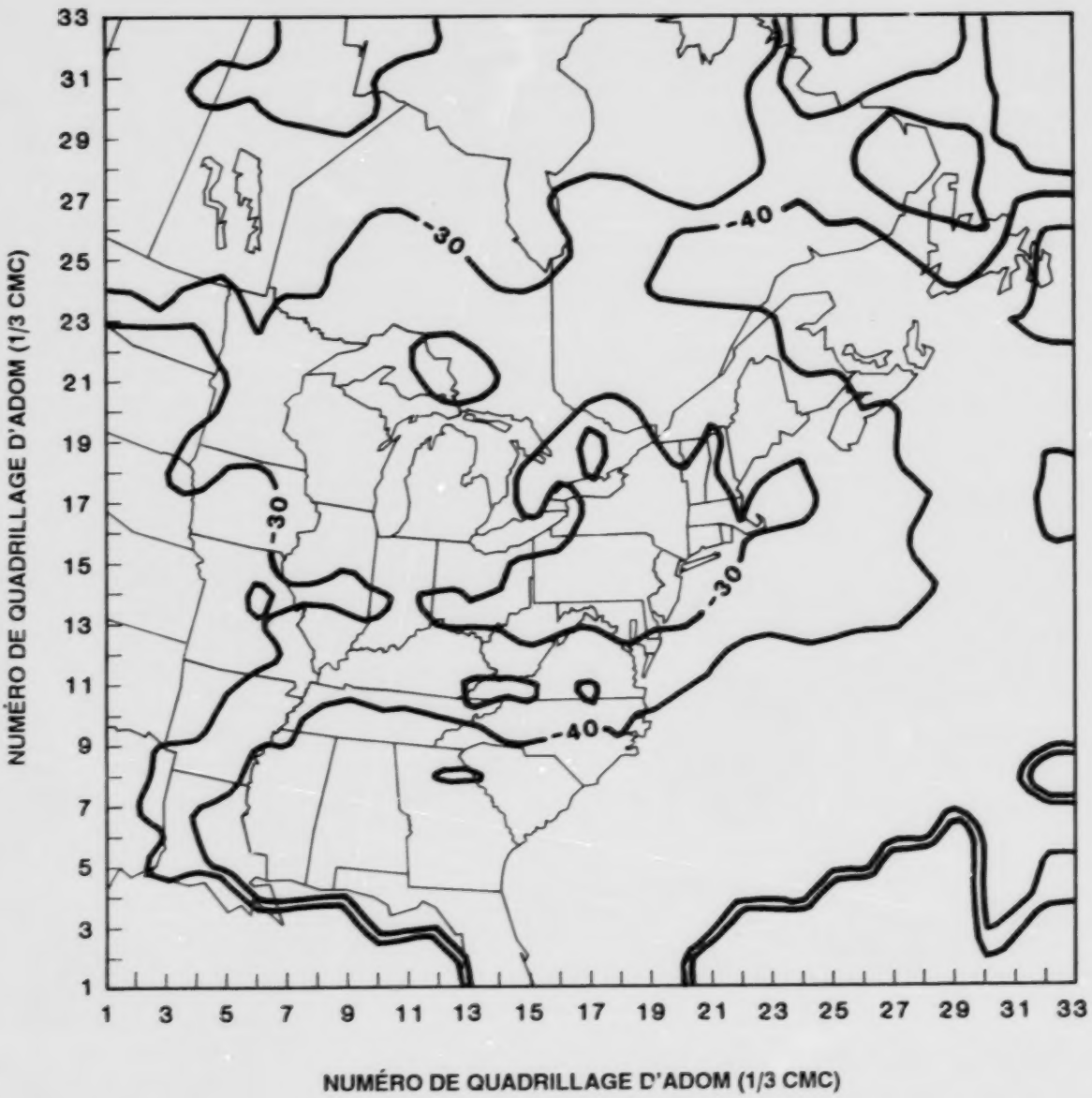


Figure 3.3.12 Moyenne calculée sur 20 jours (du 10 au 29 avril 1981) du pourcentage de réduction prévu par ADOM des concentrations de $SO_4^=$ dans les précipitations par suite d'une réduction de 50 % des émissions de SO_2 et de $SO_4^=$ dans tout le domaine.

3.3.5.c UTILISATIONS DU MODÈLE ANATEX

Au cours d'expériences sur l'émission de traceurs tenues dans toute l'Amérique du Nord, de janvier à mars 1987, trois traceurs inertes ont été émis à partir de deux emplacements (St. Cloud, Minnesota et Glasgow, Montana), à deux jours et demi d'intervalle et surveillés à 77 emplacements fixes disposés sur des arcs à peu près équidistants des points d'émission (figure 3.3.13).

On a utilisé une version simplifiée du modèle ADOM (les modules de lessivage dans les nuages, de la chimie et des dépôts secs étant enlevés parce qu'aucun de ces paramètres n'influent sur les traceurs) pour un domaine qui a été étendu vers l'ouest afin d'inclure Glasgow (Olson et al., 1989b). Dans l'ensemble, la performance du modèle pour un point d'émission considéré selon une échelle épisodique (1 à 3 jours) est limitée par la précision des données météorologiques d'entrée tandis que le modèle reproduit relativement bien la moyenne à long terme (44 jours) (figure 3.3.14). Dans ce cas, les valeurs maximales modélisées coïncident avec le point d'émission (St. Cloud, Minnesota) alors que les valeurs maximales observées se trouvent environ une à deux mailles au nord-est. Cette différence est une conséquence de la résolution spatiale limitée du réseau de mesure ainsi que de la tendance des panaches étroits à ne pas passer fréquemment par les stations de mesure les plus proches.

La première émission (environ 1800 T.U., le 5 janvier) à partir de St. Cloud sert à illustrer les limites que les données d'entrée imposent aux résultats. Le champ de vent du modèle simule de façon réaliste l'écoulement autour des principales zones de haute et de basse pression, mais il peut aplanir ou omettre les configurations détaillées de l'écoulement autour des fronts. D'après la figure 3.3.15, la bouffée modélisée a été dérivée trop loin vers l'ouest jusqu'à l'extérieur du domaine alors que la bouffée réelle a subi une advection vers le sud le 6 janvier (1300 T.U., le 6 janvier - 1200 T.U., le 7 janvier). Dans ce cas, le champ de vent modélisé n'a pas tenu compte d'un écoulement vers le nord situé derrière un front froid qui est passé à St. Cloud le 6 janvier. Olson et al. (1989b) ont attribué les différences dans les prévisions à court terme du modèle à une météorologie à petite échelle, à l'étalement initial du polluant dans toute la grille de 127 km sur 127 km et au filtrage numérique intense.

Par conséquent, en l'absence de données météorologiques ayant une plus grande résolution et d'une méthode visant à restreindre le filtrage numérique intense et la dispersion initiale du polluant, le modèle eulérien convient mieux à la simulation de systèmes épisodiques (quelques jours) comportant des sources multiples ou aux simulations à plus longs termes dans le cas d'une source unique qu'à la modélisation d'un système à une source échelonnée sur un à deux jours.

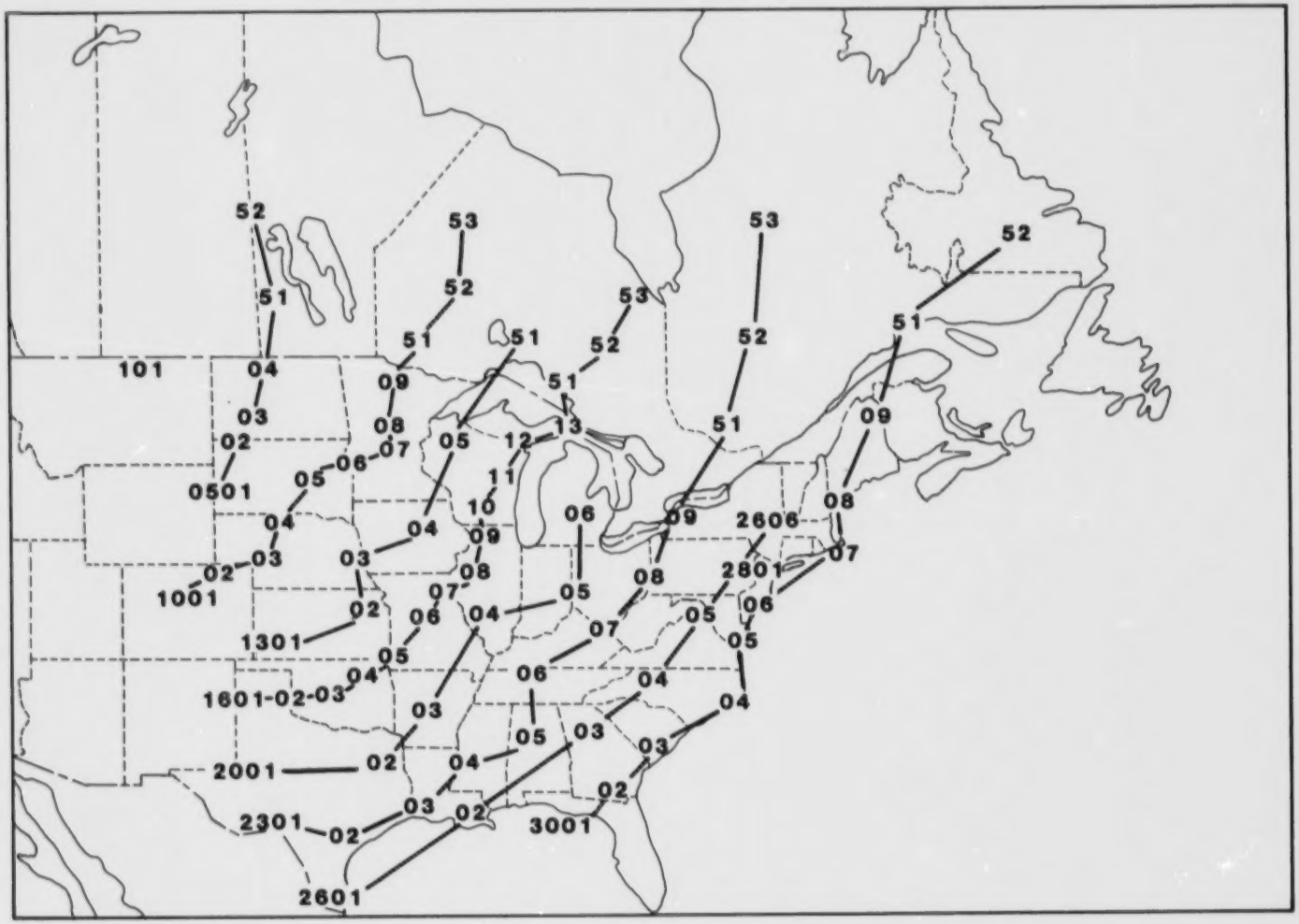


Figure 3.3.13 Réseau d'échantillonnage primaire au niveau du sol pour ANATEX. L'endroit exact des stations se trouve au centre de chaque numéro d'emplacement.

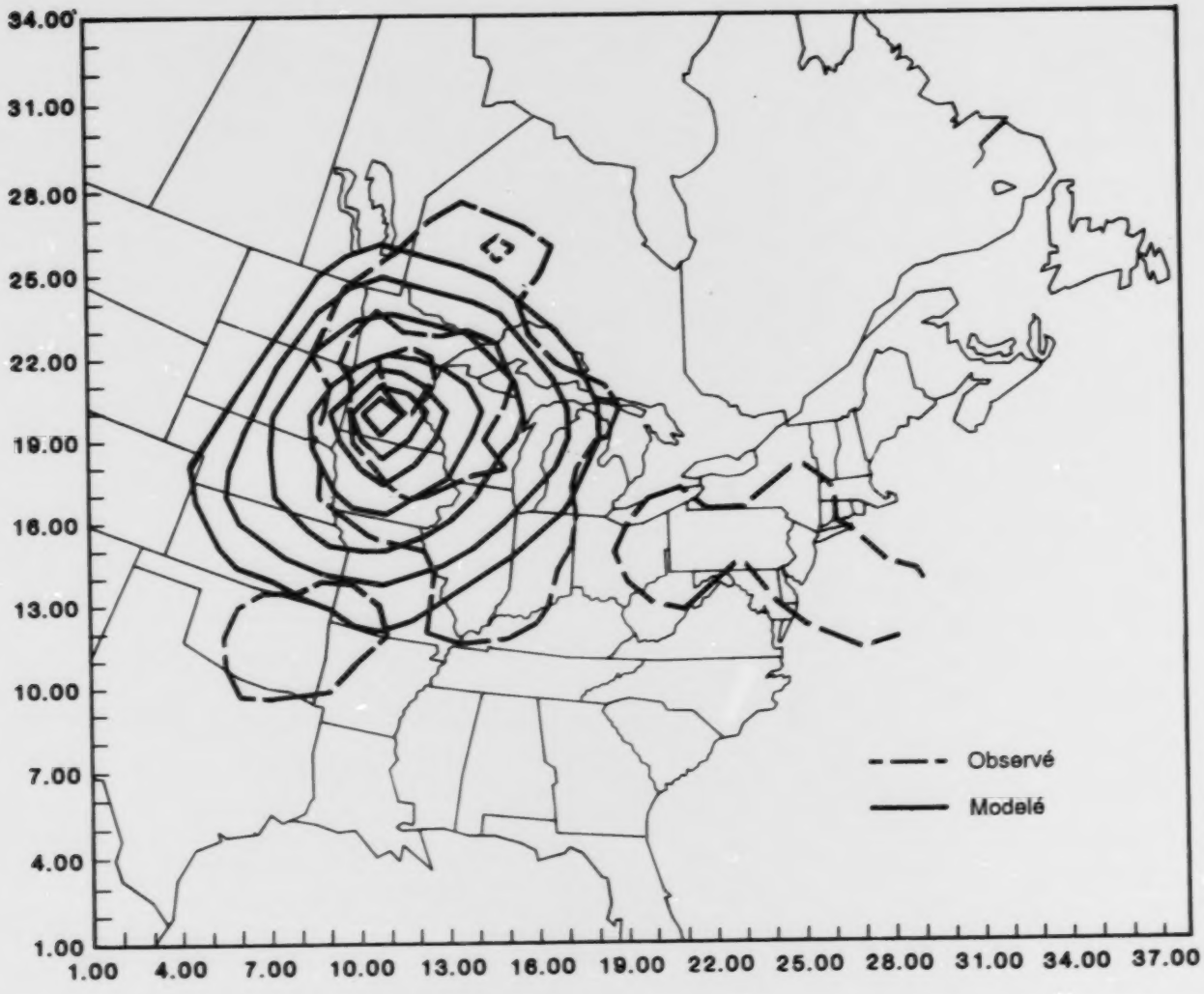


Figure 3.3.14 Configurations observées et prévues des PDCH pour les 44 premiers jours de l'utilisation d'ANATEX. Les courbes de niveau se situent à 0,5, 1, 2, 5, 10, 20, 50, 100 fl/l, et la courbe située le plus à l'extérieur est à 0,5.

fl/l : femtolitre par litre

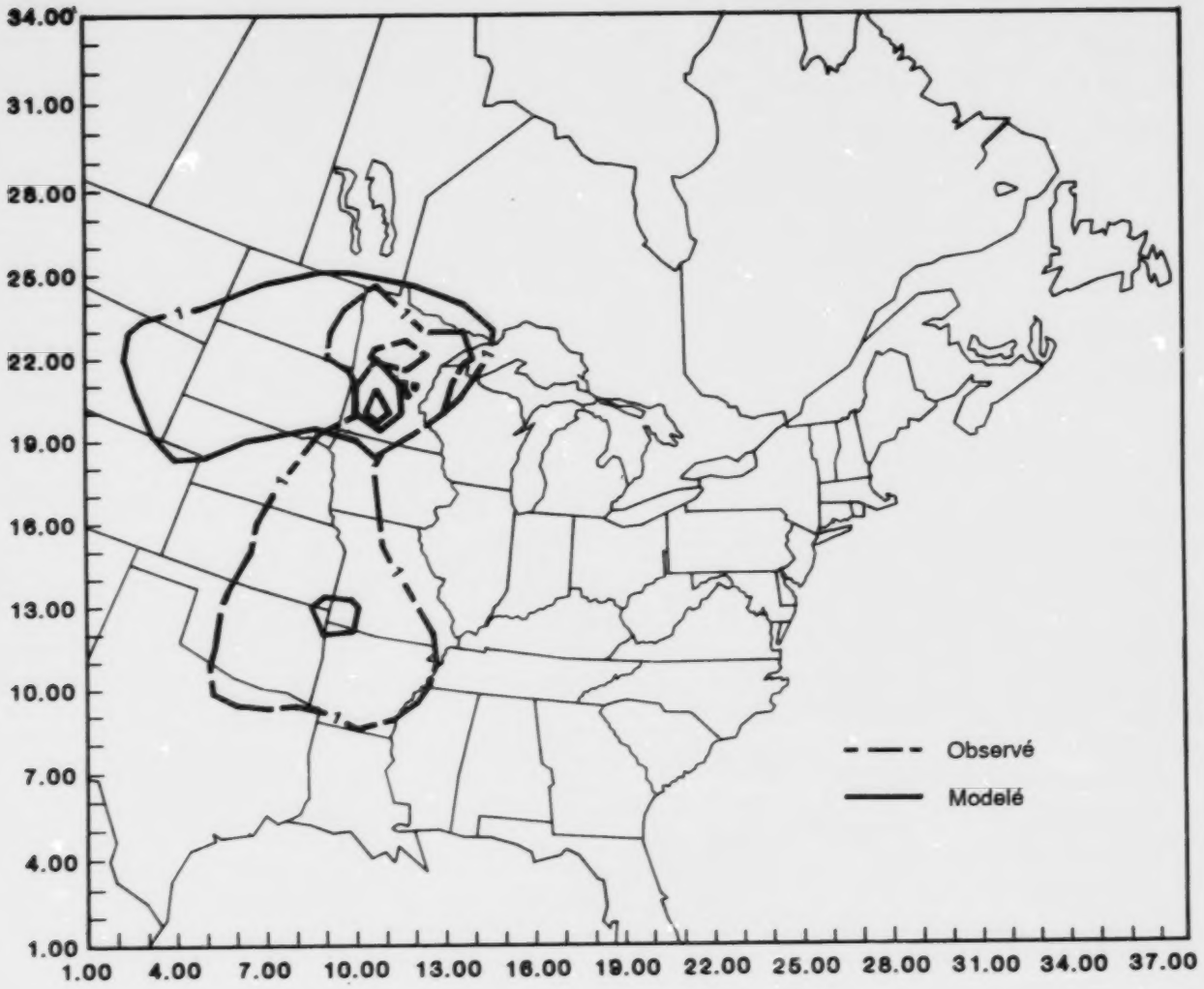


Figure 3.3.15 Configurations observées et prévues des PDCH pour les trois premiers jours suivant la première émission effectuée au cours de l'utilisation d'ANATEX. Les courbes de niveau observées débutent à 1 fl/l à partir de l'extérieur et augmentent par étape de 4 fl/l. Les courbes de niveau prévues débutent à 1 fl/l à partir de l'extérieur et augmentent par étape de 10 fl/l.

fl/l : femtolitre par litre

3.3.5.d ÉPISODE ESTIVAL DE TENEURS ÉLEVÉES EN OZONE

Puisque les concentrations d'oxydants, notamment H_2O_2 et O_3, influent sur l'oxydation du SO_2 en phase aqueuse, il est important d'évaluer celles qui sont simulées par les modèles. On a utilisé le modèle ADOM pour une période de 9 jours en juin 1983, au cours de laquelle les concentrations d'ozone étaient supérieures à 80 ppb à de nombreuses stations dans tout le nord-est des États-Unis et le sud du Canada. Pour cette série d'utilisations du modèle, un inventaire des HCR a été inclus dans les données d'entrée. Le modèle a été évalué en regard des concentrations d'ozone observées à 30 stations de l'Ontario et du nord-est des États-Unis.

La figure 3.3.16 décrit les séries chronologiques des prévisions du modèle et des observations liées à O_3 pour une grille du sud de l'Ontario et une autre du nord de l'Ohio. Les valeurs observées représentent une moyenne calculée respectivement pour 6 et 2 stations à l'intérieur de chaque maille des grilles. Le modèle a très bien reproduit les configurations quotidiennes observées et les maximums quotidiens observés au cours de la plupart des jours considérés. La comparaison statistique des valeurs maximales quotidiennes observées et modélisées à 30 stations a donné un écart type géométrique de 1,4, ce qui signifie que 95 % des prévisions différaient des valeurs observées par un facteur de 2 ou moins. Le biais du modèle a été très faible.

D'après des scénarios pour lesquels les NO_x ou les HCR ont été réduits, il faut des changements très importants dans les émissions pour produire des valeurs maximales diurnes d'O_3 qui soient significativement plus faibles dans le cas de l'échelle horizontale de la grille utilisée par ADOM. Les rapports HCR/NO_x élevés obtenus pour la majeure partie de l'Ontario ont fait que les réductions des émissions de NO_x ont eu plus d'effet sur les concentrations d'ozone que les réductions des émissions d'HCR.

3.3.5.e ÉTUDE HIVERNALE

Puisque le comportement de la chimie du soufre et de l'azote est très différent en hiver par rapport au printemps ou à l'été, on a utilisé le modèle ADOM pour une période de 10 jours au cours de l'hiver 1985. La figure 3.3.17 présente le graphique en nuage de points des concentrations observées et modélisées de SO_4^{2-} dont la moyenne a été calculée par épisode de précipitations à des emplacements répartis dans tout l'est de l'Amérique du Nord. Les points circulaires représentent des valeurs qui tiennent compte d'une journée de mesures. Les résultats ont montré une plus grande dispersion que celle qui a été obtenue au cours de l'épisode considéré pour OSCAR. La comparaison des précipitations modélisées avec celles qui ont été observées aux emplacements de surveillance de la chimie a montré une dispersion substantielle qui semble nuire à la corrélation entre la moyenne calculée pour la grille du modèle et les concentrations ponctuelles observées en phase aqueuse. Cette constatation est corroborée par les résultats médiocres obtenus grâce aux points qui représentent la moyenne d'une journée de mesures seulement. En raison des limites liées aux données d'entrée, il se pourrait

que le modèle fonctionne mieux pour la prévision des pourcentages de changement dans les dépôts que pour celle des dépôts absolus, à une échelle épisodique. Voici les résultats découlant d'autres comparaisons avec les observations.

a) Les concentrations des nitrates dans les précipitations ont montré une dispersion considérable par rapport à celle des données observées.

b) Les concentrations atmosphériques modélisées de SO_2 étaient bien corrélées avec les résultats observés, mais le modèle avait tendance à produire des surestimations.

c) Le modèle a systématiquement sous-estimé les concentrations atmosphériques de sulfates et de nitrates.

Le tableau 3.3.13 présente un résumé général des rapports entre les nitrates et les sulfates observés dans les précipitations au cours de l'utilisation d'OSCAR et de l'étude hivernale. Dans le premier cas, le modèle a très bien prévu le rapport moyen, mais la gamme des rapports modélisés n'était pas aussi large que celle qui a été observée à des emplacement ponctuels au cours d'OSCAR II. En ce qui concerne l'étude hivernale, le modèle a prévu un plus grand rapport nitrates/sulfates, mais ce dernier n'était pas aussi élevé que celui qui a été observé. À certaines stations, les rapports observés étaient trois fois plus élevés que ceux prévus par le modèle.

La figure 3.3.18 montre les pourcentages de changement dans les concentrations de $SO_4^=$ dans les précipitations pour une réduction uniforme de 50% des émissions de SO_2. Dans toute la partie centrale de la grille, la réduction modélisée variait entre 20% et 35%, les valeurs les plus faibles étant situées dans la partie ouest du domaine. Cette relation est moins linéaire que celle qui a été constatée au cours de l'utilisation printanière d'OSCAR.

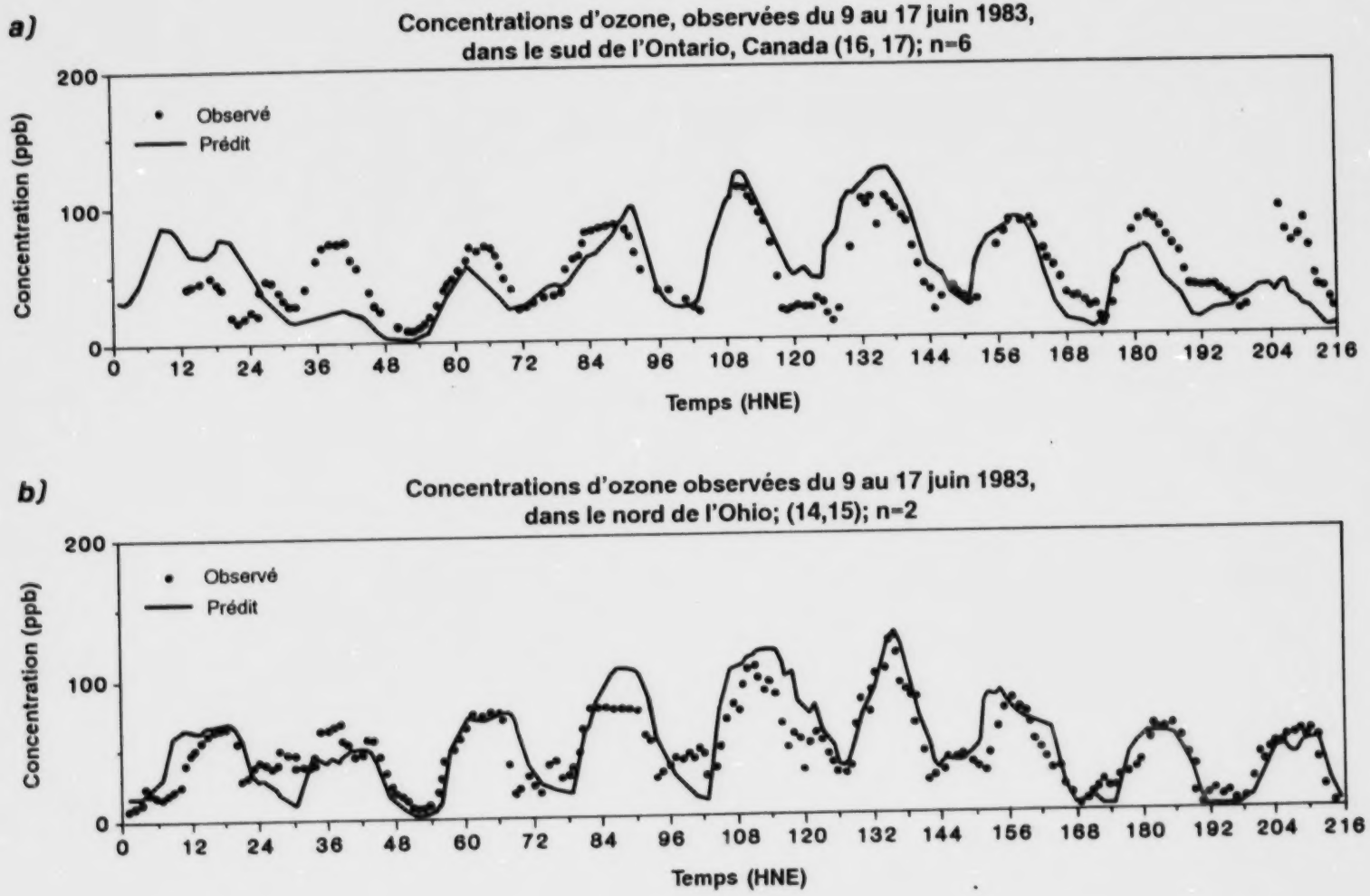


Figure 3.3.16 Concentrations d'ozone observées du 9 au 17 juin 1983, dans le sud de l'Ontario et le nord de l'Ohio.

ppb: partie par milliard

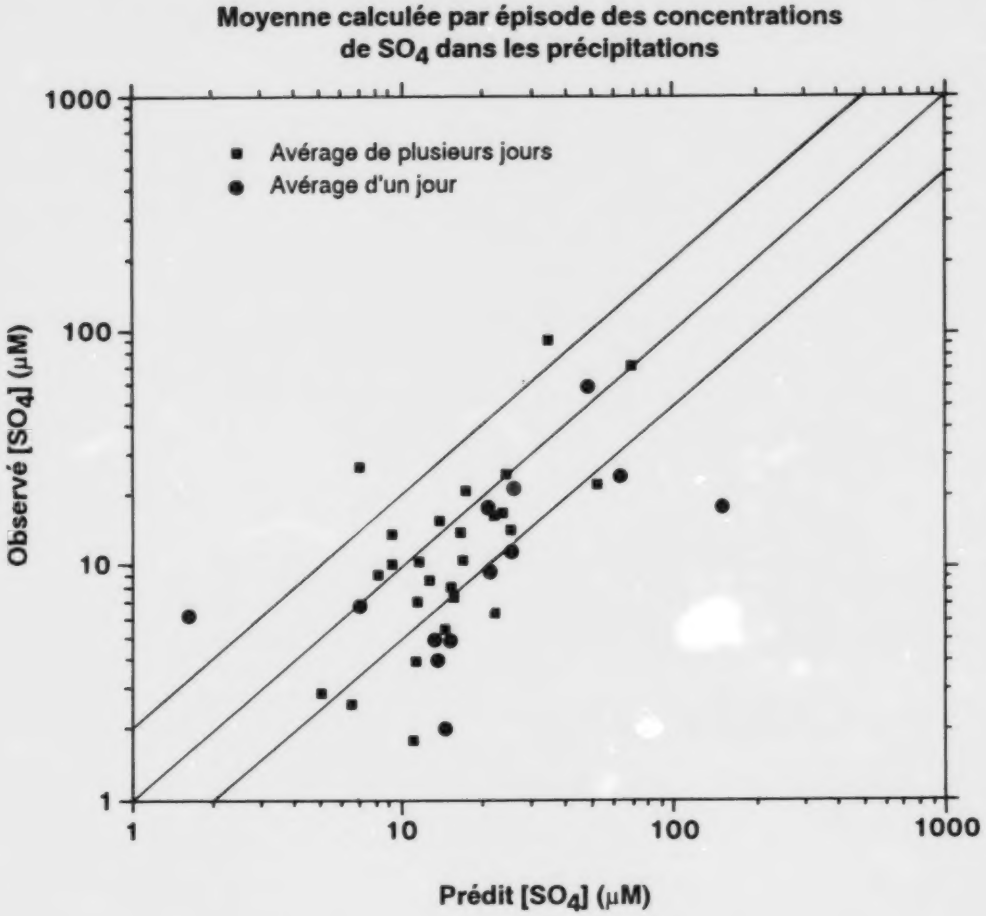


Figure 3.3.17 Moyenne calculée par épisode des concentrations de $SO_4^=$ dans les précipitations.

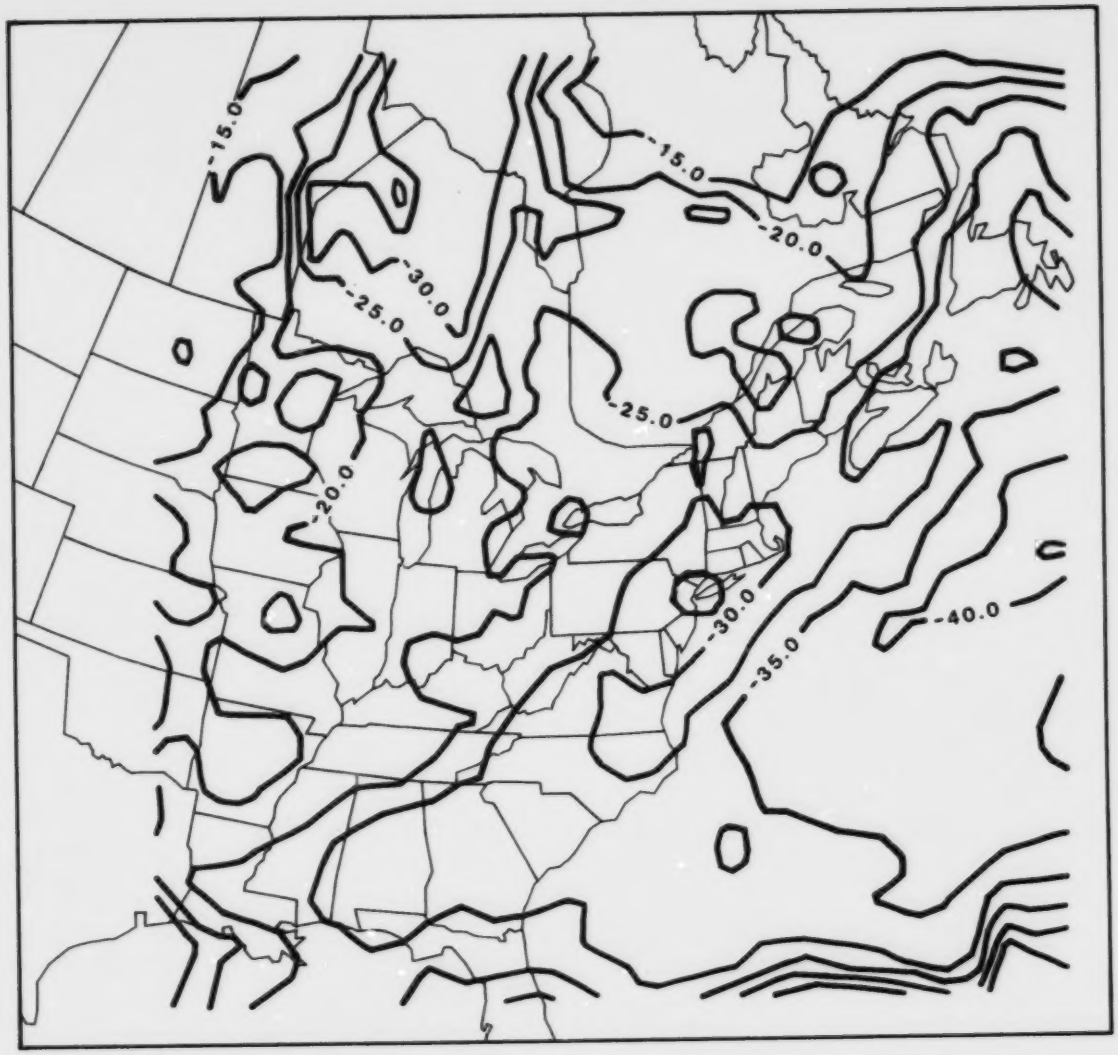


Figure 3.3.18 Réduction (%) des dépôts humides de soufre découlant d'une réduction de 50 % des émissions de SO_x dans la grille.

Tableau 3.3.13

Rapports de $NO_3^-/SO_4^=$ observés dans les précipitations au cours des phases II et IV de l'utilisation d'OSCAR et dans une période hivernale

	Valeurs observées		Valeurs prévues	
Étude	Gamme des valeurs	Moyenne géometrique	Gamme des valeurs	Moyenne géometrique
OSCAR II	0.21 - 2.53	0.89	0.55 - 1.19	0.82
OSCAR IV	0.53 - 1.49	0.91	0.52 - 1.47	0.83
Hiver	0.23 - 14.8	2.40	0.20 - 4.54	1.62

3.3.5.f ÉTUDE D'ÉVALUATION SUR LE TERRAIN DES MODÈLES EULÉRIENS

Le modèle ADOM a été évalué à l'aide de données provenant de l'étude d'évaluation sur le terrain des modèles eulériens (EMEFS). Au cours de cette étude, beaucoup d'efforts ont été déployés pour recueillir des données au niveau du sol et à l'aide d'aéronefs.

Des modalités d'évaluation des modèles (Barchet, 1989) ont été élaborées afin de servir de guide sur les genres de tests à effectuer. Ces modalités ont été révisées par un groupe externe d'examen (ERP) qui comprenait 10 experts. Elles décrivent brièvement les tests à appliquer aux modèles ADOM et RADM en vue de déterminer leurs points forts et leur applicabilité. À cette étape de l'évaluation, seules des techniques statistiques simples ont été appliquées. Les comparaisons ont été limitées jusqu'à présent aux concentrations dans l'air et dans les précipitations au niveau du sol. Les concentrations mesurées de la plupart des composés représentent des moyennes de 24 heures alors que les concentrations d'ozone ont été mesurées toutes les heures. Les sections suivantes décrivent les conclusions de l'évaluation du modèle ADOM effectuée à l'aide de données recueillies de juillet à septembre 1988.

On a stratifié les données provenant des réseaux de mesure et on en a calculé des moyennes afin de les comparer aux résultats des modèles. Les emplacements de mesure utilisés au cours de l'EMEFS sont classés en neuf régions (figure 3.3.19) fondées sur les caractéristiques des émissions et de la météorologie. Quatre emplacements jugés trop près de régions urbaines n'ont pas été classés dans les neuf régions. Un emplacement du Massachusetts ne correspondait à aucune région et a été considéré individuellement. Dans le graphique en nuages de points qui sera exposé, les points sont représentés par le numéro des régions.

La discordance occasionnelle des zones d'observation et des zones de mesure des précipitations influe sur la comparaison des concentrations dans les précipitations. Cela introduit des valeurs extrêmes dans les données (ex. : lorsque les quantités de précipitations sont très faibles, on obtient de très grandes concentrations tant dans les prévisions des modèles que dans les observations). Même si cette correspondance qualitative des valeurs extrêmes tend à appuyer le cadre de modélisation, elle n'est pas très utile pour l'analyse objective des comparaisons entre les prévisions des modèles et les observations. En calculant une moyenne pour des épisodes de précipitations d'une durée de 4 à 7 jours, les valeurs extrêmes sont d'une certaine façon filtrées, ce qui rend plus facile l'interprétation des graphiques en nuages de points. Tous les graphiques en nuages de points de la présente section représentent des données moyennes calculées sur une certaine période.

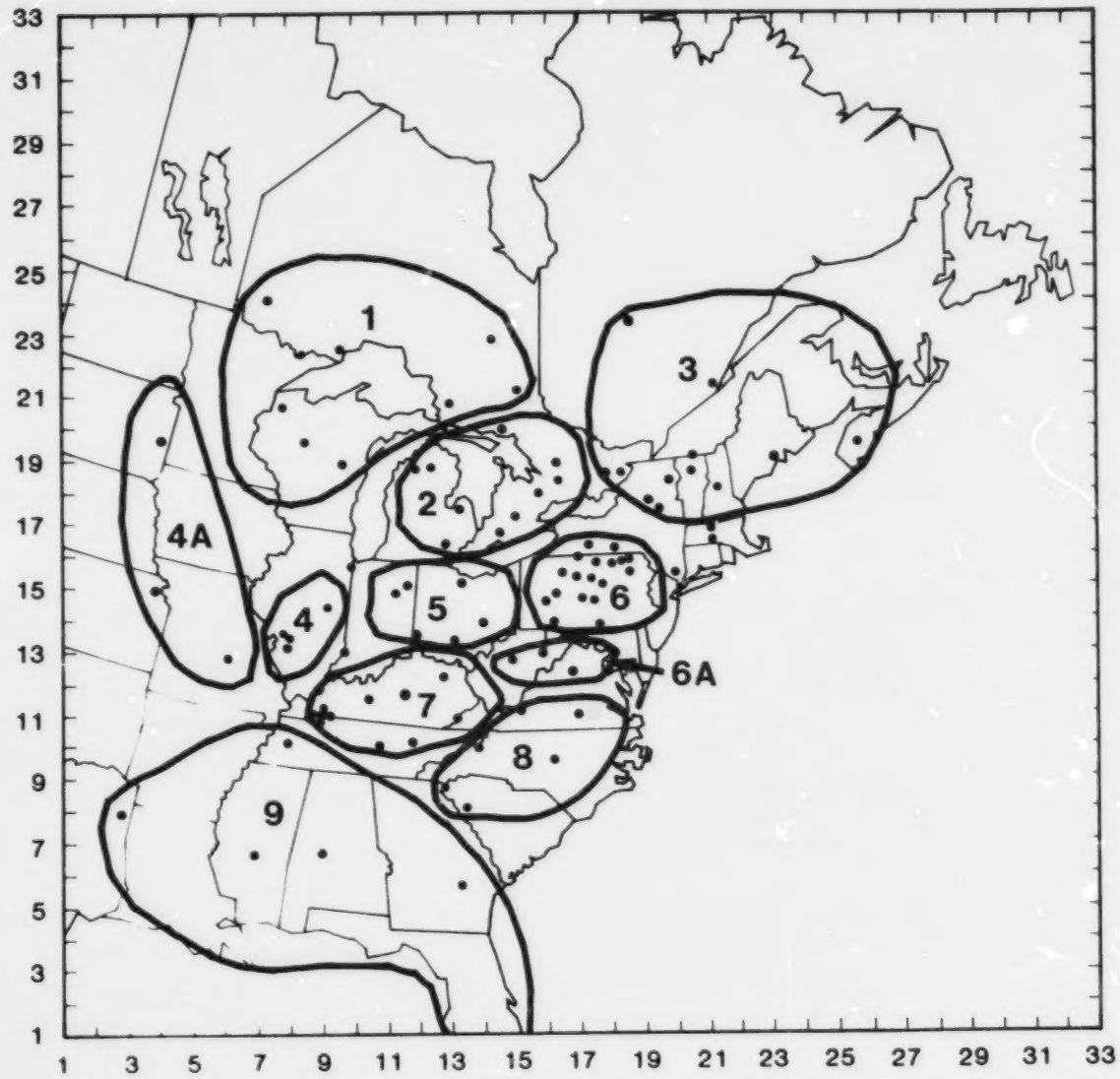


Figure 3.3.19 Emplacements et régions de surveillance utilisés pour l'étude d'évaluation sur le terrain des modèles d'Euler (EMEFS).

On a effectué deux genres d'analyses de régression sur les données du modèle ADOM présentées ci-dessous sous forme de nuages de points : 1) une régression linéaire ordinaire à deux degrés de liberté, soient la pente et l'ordonnée à l'origine; 2) une régression linéaire contrainte de passer par l'origine et n'ayant donc qu'un seul degré de liberté, soit la pente.

Dans les sections suivantes, nous présenterons les résultats du modèle ADOM pour deux périodes : du 28 juillet au 8 août 1988 et du 25 août au 5 septembre 1988. Ces deux périodes seront appelées période 1 et 2, respectivement. La première période correspond à un épisode de concentrations élevées d'O_3 qui s'est produit dans le sud de l'Ontario. La seconde correspond aux douze premiers jours d'une période d'évaluation que l'on a décidé de tenir à des fins de comparaison. Puisqu'il n'y a pas d'interaction directe entre les composés du soufre et de l'azote dont le modèle tient compte, ces derniers feront l'objet d'une discussion distincte présentée plus loin.

La figure 3.3.20 présente les concentrations modélisées de SO_2 au niveau du sol en fonction des concentrations observées pour les périodes 1 et 2. Pour la première période, la moyenne de tous les points observés est de 6,33 $\mu g/m^3$. Cela indique une surestimation générale d'environ 10 pour cent de la part du modèle par rapport à la moyenne des valeurs observées. Par ailleurs, la pente de la droite, dans le cas de la régression contrainte de passer par l'origine, est de 0,98. Il semble que cette pente soit contrôlée par quelques points qui montrent une sous-estimation par rapport à des valeurs observées élevées. Dans le cas de la régression ordinaire, on obtient une ordonnée à l'origine de 1,86 $\mu g/m^3$ et une pente de 0,8. En ce qui concerne la seconde période, la surestimation que l'on peut constater dans le graphique est confirmée lorsqu'on compare la moyenne des valeurs observées (5,39 $\mu g/m^3$) avec celle des valeurs modélisées (6,98 $\mu g/m^3$). Ceci correspond à une surestimation de près de 30 %. La pente de la droite contrainte de passer par l'origine est de 1,15; elle indique une surestimation. Les résultats de la régression non contrainte sont : une pente de 0,9 et une ordonnée à l'origine de 2,15 $\mu g/m^3$. Ils sont conformes aux résultats de la première période. Le coefficient de détermination R^2 est de 0,53 (période 1) et de 0,57 (période 2). Les différentes régions considérée donne sensiblement les même résultats.

La figure 3.3.21 présente les graphiques des séries chronologiques obtenues pour les périodes 1 et 2 et les régions 3 et 5. Les tendances temporelles peuvent être attribuées, d'après une première approximation, à l'impact des SO_2 aux précipitations. Dans le cas de la région 5, qui comprend la zone de fortes émissions de l'Ohio, une concentration croissante du SO_2 peut être reliée, d'après une première approximation, à une accumulation survenue au cours d'une période sans précipitations, tandis qu'une concentration décroissante peut être attribuée au lessivage et à une transformation rapide dans les nuages. Le comportement observé dans la région 3 peut aussi être expliqué par les facteurs susmentionnés ainsi que par le transport en direction et en provenance de la région. Au cours de la première période, les régions 3 et 5 ont connu une activité météorologique plutôt erratique. Les différentes parties de la région 3 ont subi, à divers

moments, du brouillard, de la bruine, de la pluie continue et des averses. Au cours de cette période, la région 5 a connu du brouillard et de la grêle. Pour ce qui est de la seconde période, les deux régions ont subi trois épisodes bien définis de précipitations : du 25 au 25 août; du 28 au 29 août pour la région 5 et du 29 au 30 août pour la région 3; et du 4 au 5 septembre. Il n'y a pas eu de fortes surestimations pour les régions 3 et 5 au cours de la période 1, mais les surestimations sont indéniables dans le cas des deux régions au cours de la période 2. Ceci corrobore les analyses des graphiques présentés à la figure 3.3.20. La corrélation entre les concentrations observées et prévues au cours de la période 2 est meilleure que pour la période 1. Ceci est probablement dû à ce que le configuration météorologique de la seconde période est plus structuré (ex. : séparation claire entre les périodes de précipitations et les périodes sèches et moins de précipitations à l'échelle d'une fraction de maille et donc mieux représenté par les données d'entrée du modèle. En fait, le graphique correspondant à la région 5 pendant la première période indique effectivement des fluctuations plutôt complexes des concentrations, peut-être dues à une météorologie complexe. Dans une telle situation, le modèle peut être mis à rude épreuve.

La figure 3.3.22 montre les concentrations modélisées et observées de $SO_4^=$ au niveau du sol pour les périodes 1 et 2. Au cours de la première période, seulement 17 stations ont mesuré le $SO_4^=$. Ces observations limitées montrent des sous-estimations constantes de la part du modèle. La valeur moyenne observée est de 8,23 $\mu g/m^3$, soit plus de deux fois la valeur moyenne modélisée aux points observés, qui est de 3,89 $\mu g/m^3$. Parmi les 17 points, seulement deux, situés à l'extrémité inférieure, correspondent à une surestimation. La pente de la droite de régression contrainte de passer par l'origine et celle de la régression linéaire ordinaire sont de 0,41 et 0,45, respectivement. L'ordonnée à l'origine de la régression ordinaire est de 0,5 $\mu g/m^3$. La valeur maximale atteinte par le modèle à ces points est inférieure à 7,5 $\mu g/m^3$ tandis que celle des observations (points différents de ceux qui sont modélisés) est supérieure à 16 $\mu g/m^3$. Dans le cas de la seconde période, le $SO_4^=$ est encore sous-estimé. La valeur moyenne observée pour les 65 points est de 5,8 $\mu g/m^3$. Leur valeur moyenne modélisée est de 3,7 $\mu g/m^3$. Les quelques points qui correspondent à une surestimation se trouvent tous dans la moitié inférieure de la fourchette des valeurs observées. La pente de la droite de régression contrainte de passer par l'origine est de 0,59. Les résultats de la régression linéaire ordinaire donnent une pente de 0,42 et une ordonnée à l'origine de 1,2 $\mu g/m^3$. Comme pour la première période, la valeur maximale modélisée à ces endroits est inférieure à 7,5 $\mu g/m^3$ tandis que le maximum observé dépasse 14 $\mu g/m^3$. Le coefficient de détermination R^2 est de 0,84 pour la période 1 et de 0,65 pour la période 2. En général, les concentrations de $SO_4^=$ au niveau du sol ont une dispersion moindre que celles du SO_2 au niveau du sol, et les fourchettes des valeurs modélisées sont semblables pour les deux périodes.

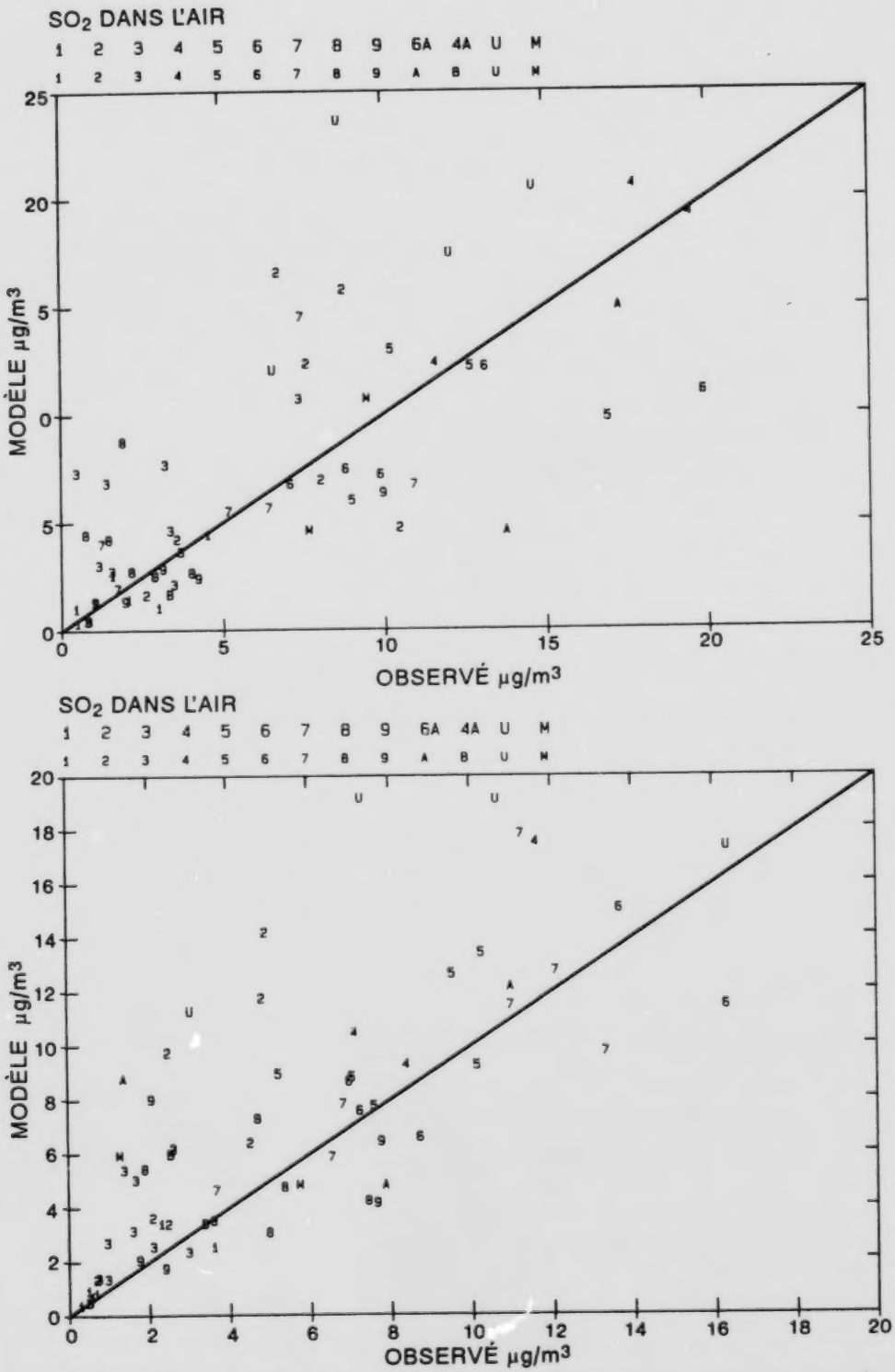


Figure 3.3.20 Prévisions des modèles et concentrations de SO_2 ($\mu g/m^3$) observées au niveau du sol du 28 juillet au 8 août et du 25 août au 5 septembre 1988.

Les numéros se rapportent à des régions indiquées sur la figure 3.3.19.

TENDANCE RÉGIONALE DE SO_2

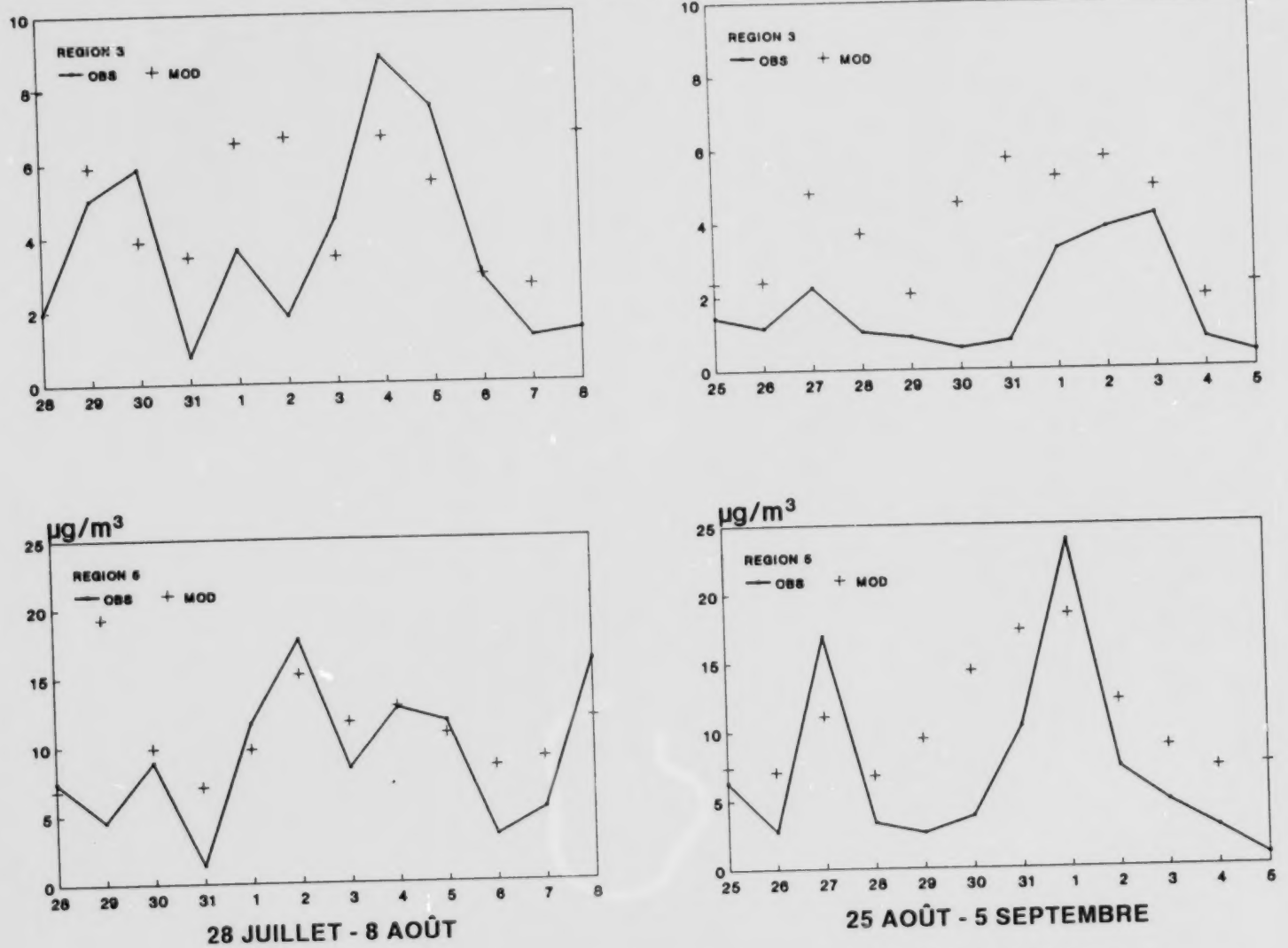


Figure 3.3.21 Graphique des séries chronologiques des concentrations moyennes observées et prévues de SO_2 ($\mu g/m^3$) dans les régions 3 et 5 au cours des périodes 1 et 2.

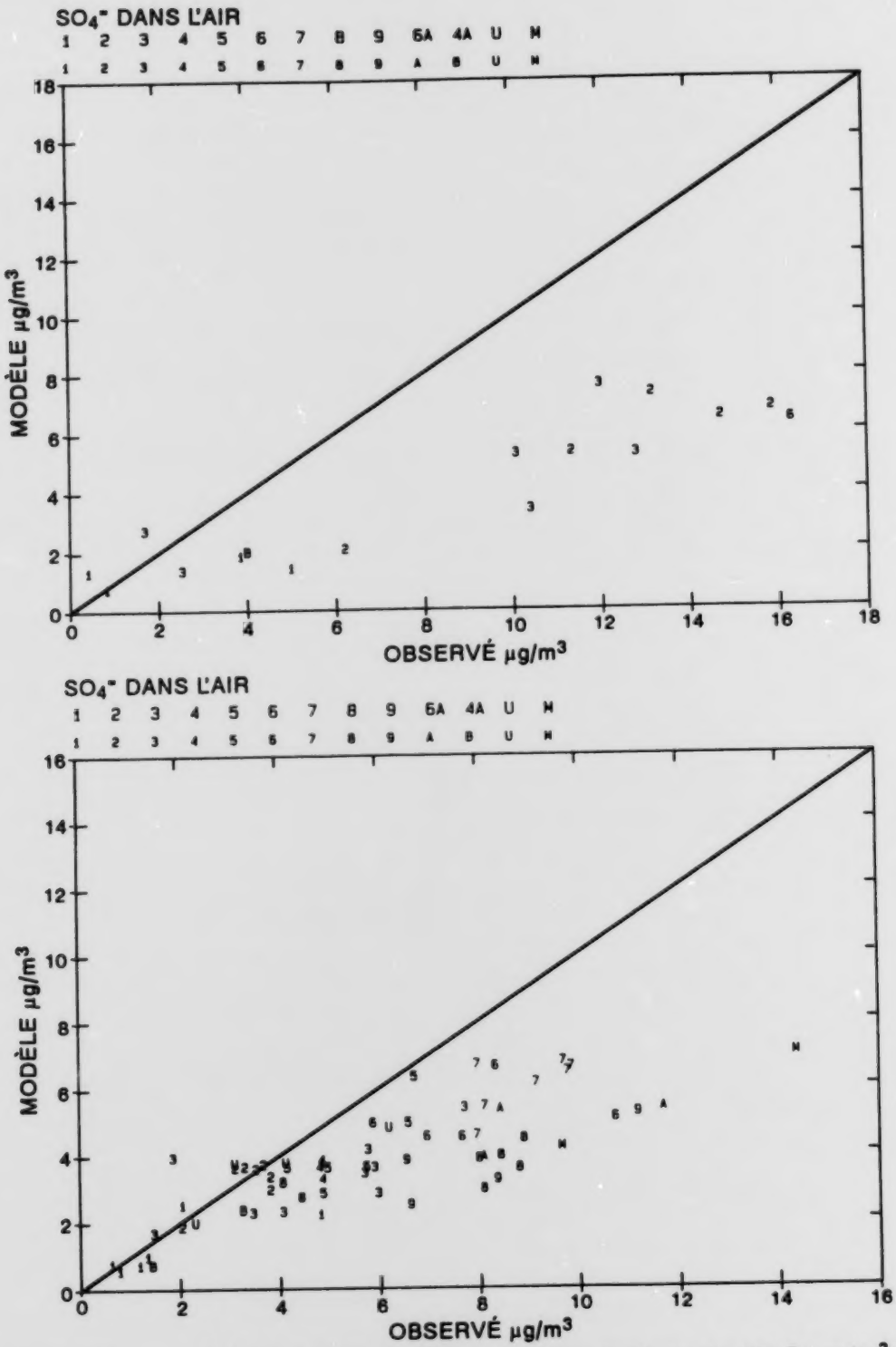


Figure 3.3.22 Prévisions des modèles et concentrations de $SO_4^=$ ($\mu g/m^3$) observées au niveau du sol du 28 juillet au 8 août et du 25 août au 5 septembre 1988.
Les numéros se rapportent à des régions indiquées sur la figure 3.3.19.

TENDANCE RÉGIONALE DE $SO_4^=$

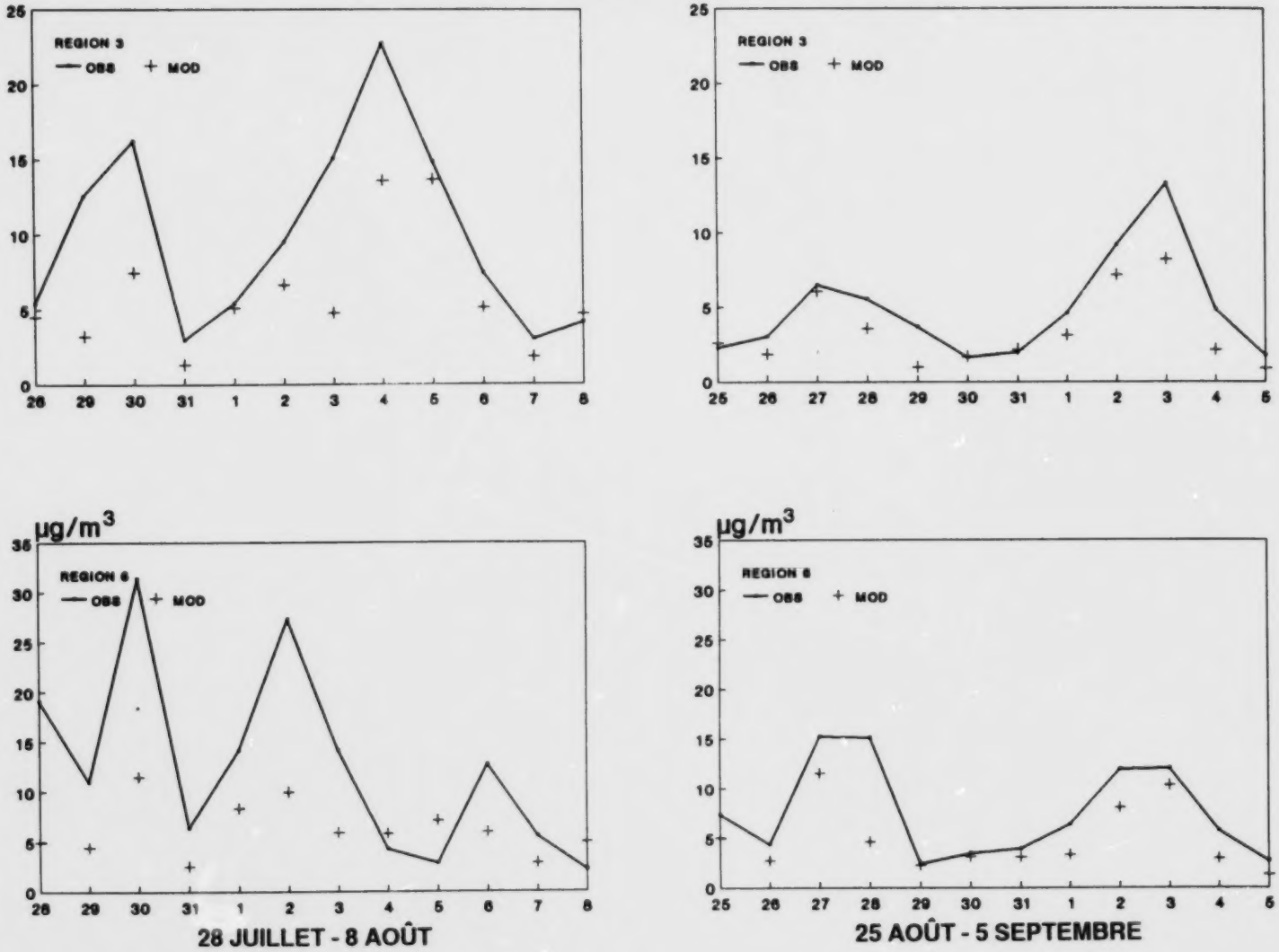


Figure 3.3.23 Graphique des séries chronologiques des concentrations moyennes observées et prévues de $SO_4^=$ ($\mu g/m^3$) dans les régions 3 et 6 au cours des périodes 1 et 2.

Les graphiques des séries chronologiques tracés pour les périodes 1 et 2 et pour les régions 3 et 6 sont présentés à la figure 3.3.23. Il n'y a pas de données observées pour la région 5 au cours de la première période. On peut observer deux tendances constantes : la périodicité des données observées est bien reproduite par le modèle, les valeurs maximales observées sont sous-estimées. Dans le cas des deux régions, les fluctuations sont causées par une combinaison du lessivage par les précipitations et du transport en direction et en provenance de la région.

La figure 3.3.24 présente une comparaison des concentrations modélisées et observées de tout le soufre (SO_2 et $SO_4^=$)pour les périodes 1 et 2. L'analyse de la première période indique que le modèle a produit des sous-estimations d'environ 8 pour cent. Toutefois, étant donné le petit nombre de points disponibles (seulement 13 points compris dans 3 régions comportent des observations des concentrations atmosphériques de SO_2 et de $SO_4^=$), les résultats de toute analyse devront être traités avec circonspection. Par contre, on peut certainement s'attendre à une modeste sous-estimation découlant de la faible surestimation des concentrations atmosphériques de SO_2 et de la sous-estimation importante des concentrations atmosphériques de $SO_4^=$ signalées pour cette période. Encore une fois, toutes les régions comportent des points des deux côtés de la droite de pente unitaire. Pour la seconde période, le graphique comprend 53 points. L'analyse indique que le modèle a produit des surestimations atteignant seulement 2 pour cent. La pente de la droite de régression contrainte de passer par l'origine est de 1,0. L'analyse de régression ordinaire donnent une pente de 0,92, une ordonnée à l'origine de 0,51 $\mu g/m^3$ et un coefficient de détermination R^2 de 0,67.

La figure 3.3.25 montre les concentrations modélisées et observées de $SO_4^=$ dans les précipitations pour les périodes 1 et 2. On peut constater immédiatement deux particularités : peu de biais systématique et une forte dispersion. La moyenne des valeurs observées et modélisées appuie la première constatation. Pour la période 1, la valeur moyenne observée est de 3,49 mg/l, et la valeur moyenne modélisée, de 3,71 mg/l. Ces deux moyennes diffèrent par moins de 10 %. En ce qui concerne la seconde période, les valeurs moyennes observées et modélisées sont respectivement de 2,49 mg/l et de 2,47 mg/l. Cette différence de moins de 1 pour cent indique qu'il n'y a, à toutes fins pratiques, pas de biais. Les faibles coefficients de détermination R^2 pour les deux périodes (0,07 pour la première et 0,16 pour la deuxième) indiquent une grande dispersion.

Cette grande dispersion peut être attribuée à deux facteurs. Premièrement, la comparaison présentée à la figure 3.3.25 a trait à des points (dans le cas des valeurs observées) et à des valeurs moyennes calculées pour une superficie (dans le cas des valeurs modélisées). La variabilité dans les précipitations à une échelle inférieure à celle de la grille peut être la cause de beaucoup de discordance dans les comparaisons lorsque la quantité des précipitations observées diffère de la moyenne de la grille. La nature très sporadique des précipitations garantit une discordance fondamentale importante. Deuxièmement, ces deux périodes n'ont pas duré plus de douze jours. Au

cours de chaque période, chaque emplacement n'a pas subi plus de trois ou quatre épisodes de précipitations. Ces périodes sont trop courtes pour que le calcul des moyennes ait éliminé l'effet des valeurs extrêmes. Cela indique que les coefficients de détermination ne sont pas significatifs pour l'interprétation des concentrations de sulfates dans les précipitations.

La figure 3.3.26 présente les concentrations modélisées et observées de NO_2 au niveau du sol pour les périodes 1 et 2. Dans le cas de la première période, les données montrent une sous-estimation d'environ 20 pour cent (6.8 $\mu g/m^3$ pour la valeur moyenne observée et 5,5 $\mu g/m^3$ pour la valeur moyenne modélisée). La pente de régression contrainte de passer par l'origine est de 0,64. En raison de la présence d'un point aberrant (une prévision du modèle de plus de 30 $\mu g/m^3$), le coefficient de détermination R^2 est très faible (0,055). Par conséquent, l'analyse de régression ordinaire qui donne une pente de 0,28 et une ordonnée à l'origine de 3,5 $\mu g/m^3$ ne serait pas très significative. Le point aberrant représente une mesure d'une journée (cette station n'a pris des mesures que pendant une journée au cours de la période) prise très près de la ville de New York. La valeur moyenne modélisée a aussi été touchée par cette mesure aberrante. Sans ce point, la sous-estimation serait d'environ 30 pour cent. Pour la seconde période, le modèle a produit des sous-estimations de moins de 5 pour cent (5,05 $\mu g/m^3$ pour la moyenne des valeurs observées et 4,86 $\mu g/m^3$ pour la moyenne des valeurs modélisées). Le coefficient de détermination R^2 pour cette période est de 0,47, et l'analyse de régression donne une pente de 0,87 ainsi qu'une ordonnée à l'origine de 0,46 $\mu g/m^3$.

La figure 3.3.27 présente les graphiques des séries chronologiques des valeurs régionales moyennes pour les régions 3 et 6 et les périodes 1 et 2. Une valeur manque pour le 31 juillet 1988 dans le cas de la région 3 parce qu'aucune des stations de cette région ne fonctionnait. (Il manque encore davantage de jours pour la région 5; les résultats obtenus pour la région 6 sont donc présentés en remplacement.) Pour la première période, les données de la région 3 indiquent que les concentrations observées ont suivi des tendances opposées à celles des concentrations modélisées, après le 31 juillet. Les données de la région 6 indiquent que le modèle a produit des sous-estimations importantes pour presque toute la première période. Ceci correspond aux sous-estimations représentées dans le graphique. Dans le cas de la seconde période, les données relatives à la région 3 montrent des surestimations importantes constantes de la part du modèle. On observe aussi une surestimation globale dans les graphiques des séries chronologiques d'autres régions (ex. : 2 et 5). Les données de la région 6 indiquent une sous-estimation au début et à la fin de la période. Si l'on considère l'ensemble de ces résultats, il semble y avoir contradiction avec les sous-estimations signalées dans le paragraphe précédent. Cependant, on a constaté qu'environ 16 stations de la région 6 fonctionnaient tandis qu'entre 1 et 3 stations fonctionnaient au cours de la même période dans les autres régions. Le cas échéant, on attribuerait donc une pondération supérieure à la région 6, pour laquelle le modèle a produit des sous-estimations.

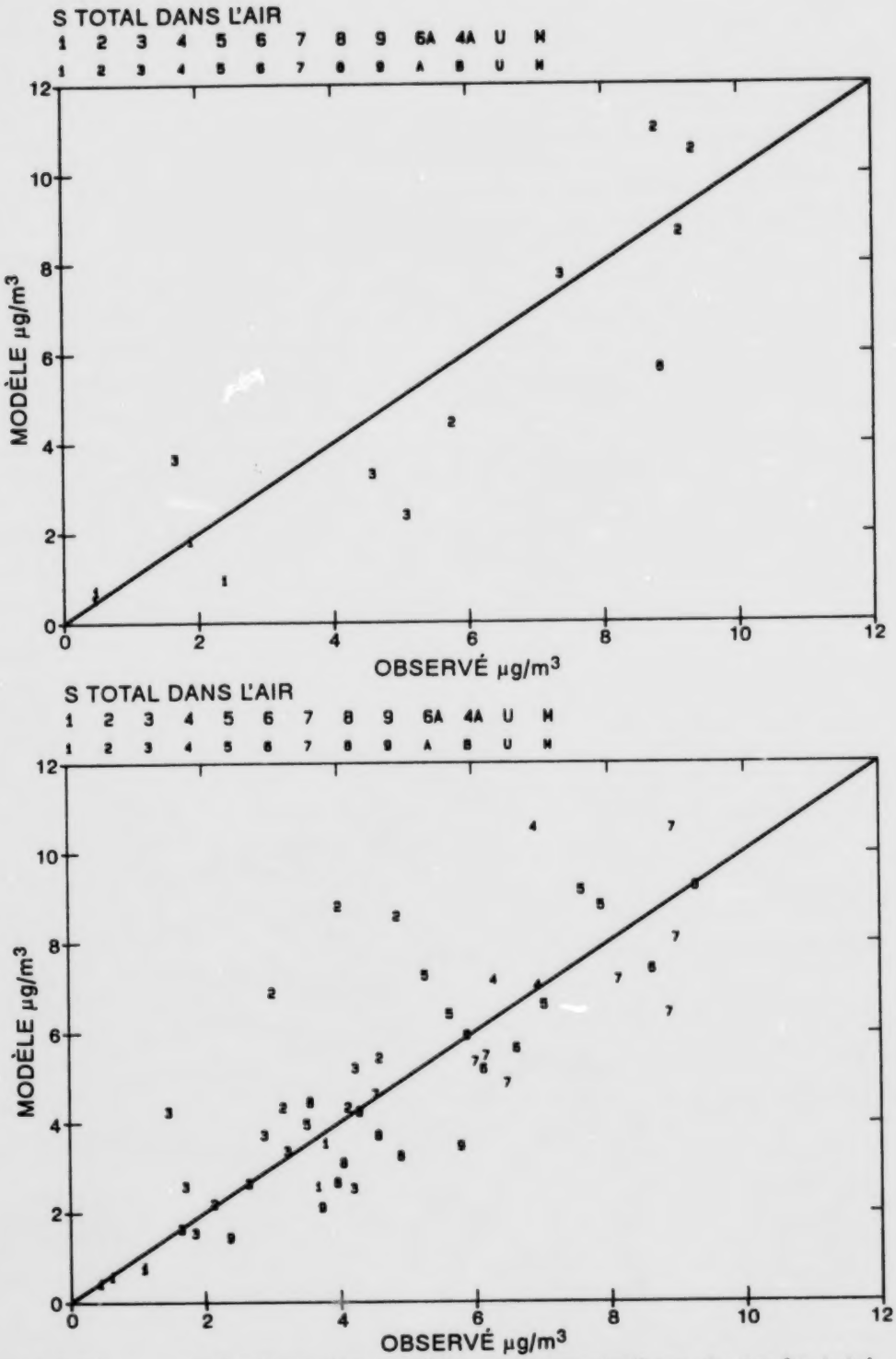


Figure 3.3.24 Prévisions des modèles et concentrations du soufre total ($\mu g/m^3$) observées au niveau du sol du 28 juillet au 8 août et du 25 août au 5 septembre 1988.
Les numéros se rapportent à des régions indiquées sur la figure 3.3.19.

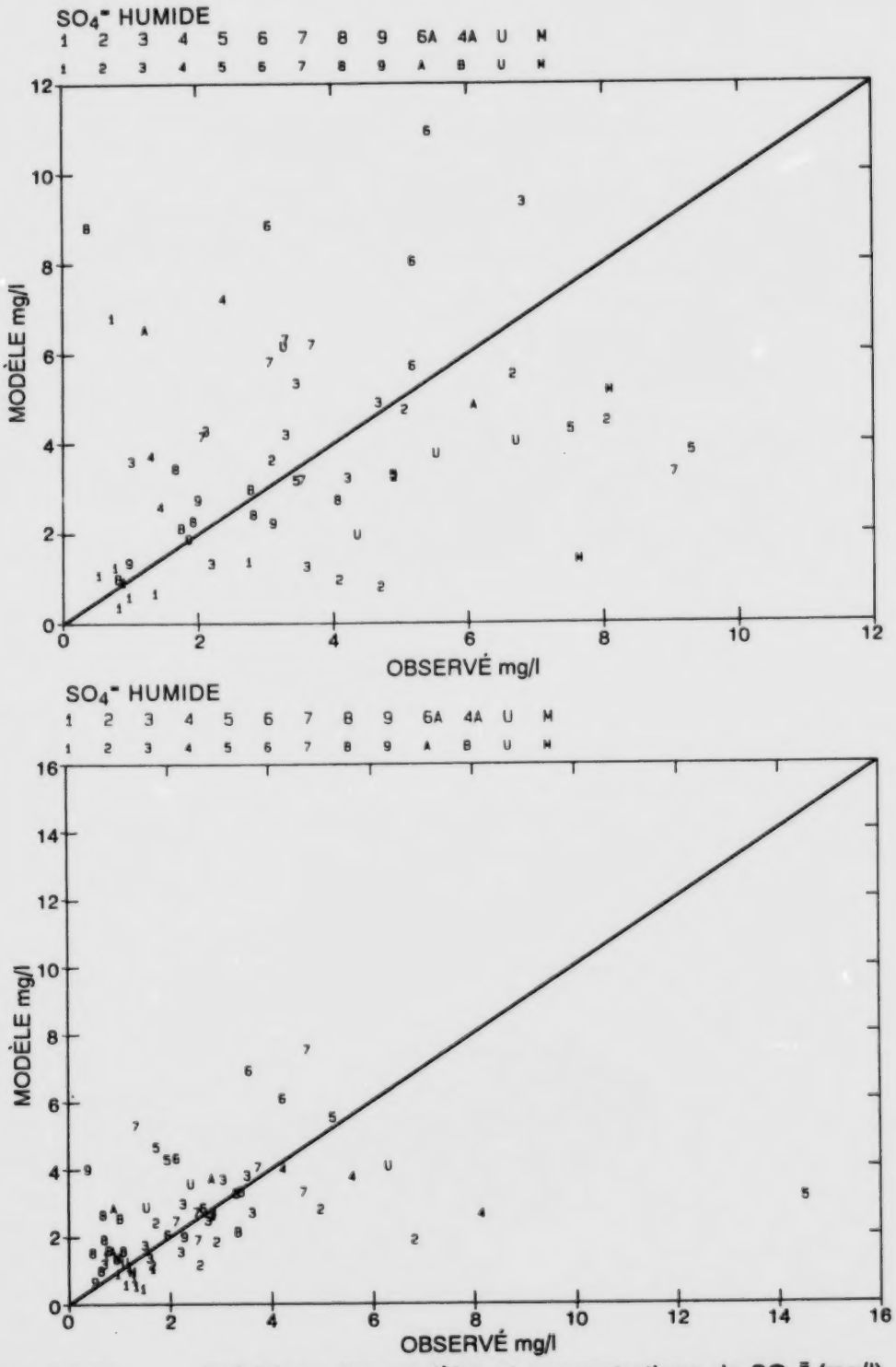


Figure 3.3.25 Prévisions des modèles et concentrations de $SO_4^=$ (mg/l) observées dans les précipitations du 28 juillet au 8 août et du 25 août au 5 septembre 1988.
Les numéros se rapportent à des régions indiquées sur la figure 3.3.19.

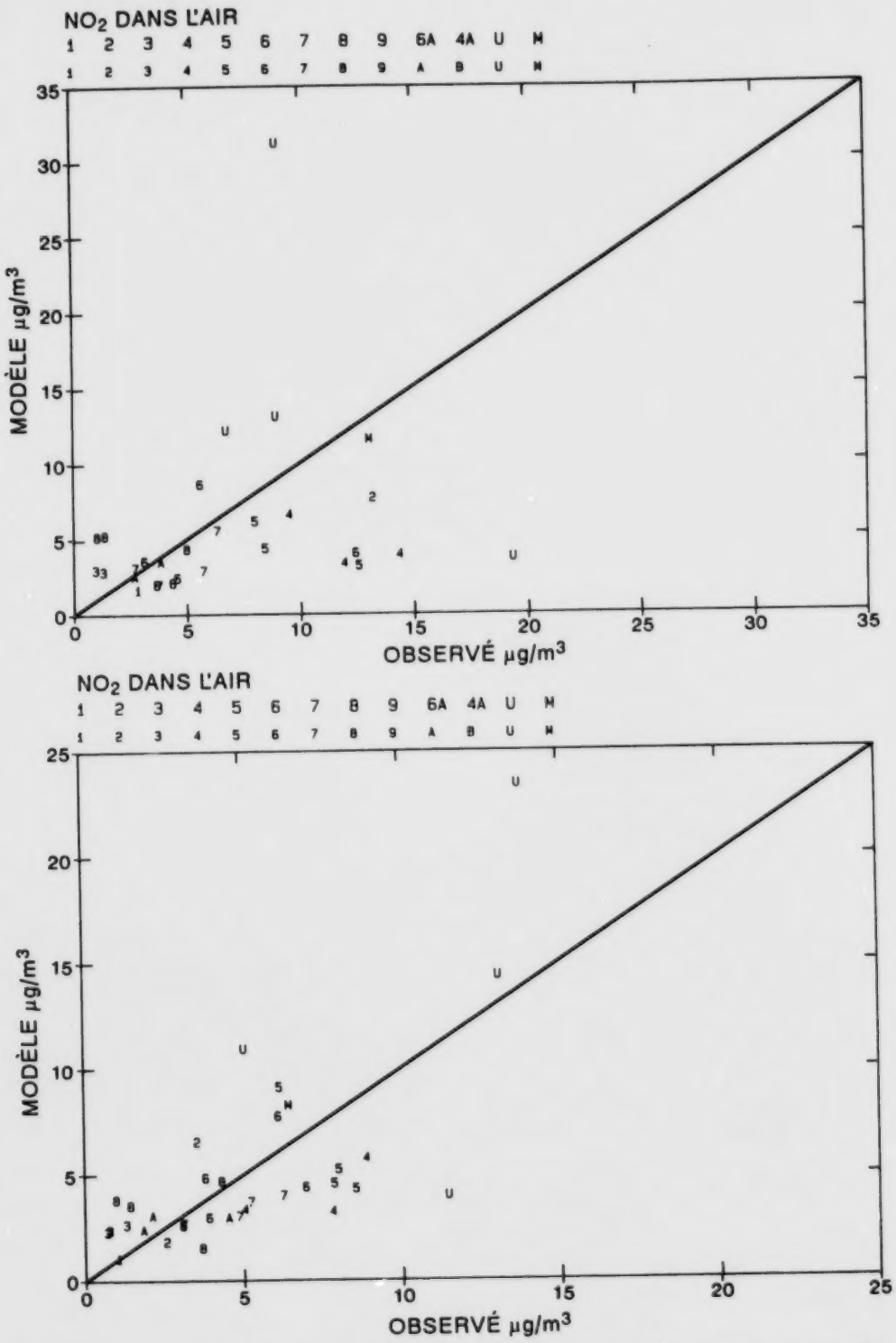


Figure 3.3.26 Prévisions des modèles et concentrations de NO_2 ($\mu g/m^3$) observées au niveau du sol du 28 juillet au 8 août et du 25 août au 5 septembre 1988.
Les numéros se rapportent à des régions indiquées sur la figure 3.3.19.

TENDANCE RÉGIONALE DE NO_2

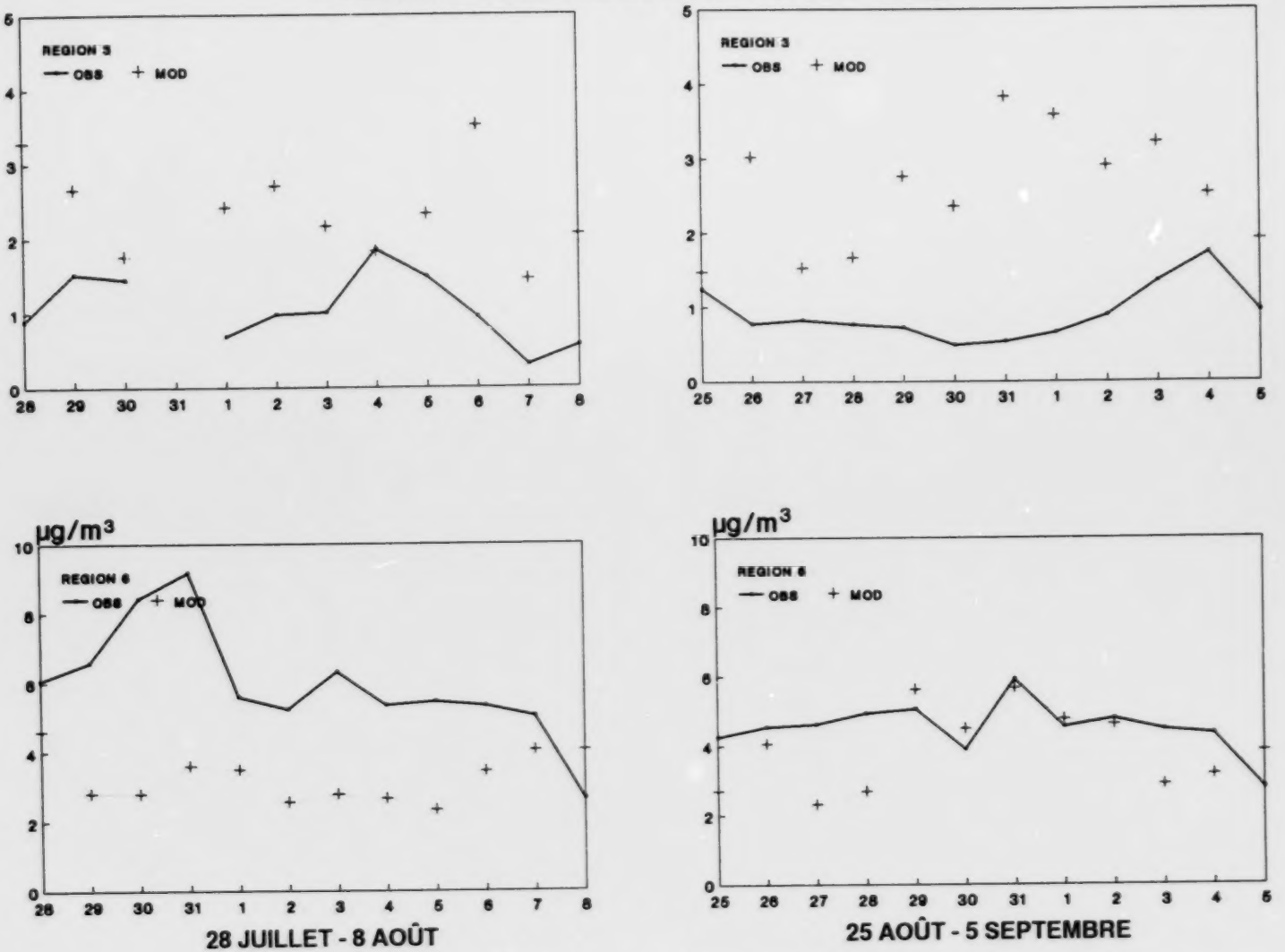


Figure 3.3.27 Graphique des séries chronologiques des concentrations moyennes observées et prévues de NO_2 ($\mu g/m^3$) dans les régions 3 et 6 au cours des périodes 1 et 2.

Puisque le NO_2 se forme principalement au cours de réactions en phase gazeuse et qu'il n'est pas très soluble dans l'eau, les fluctuations observées dans les séries chronologiques résultent principalement de transformations chimiques en phase gazeuse et du transport. Le manque de corrélation entre les tendances temporelles dans certaines régions peut être attribué à la dominance des sources locales (en raison de la transformation rapide du NO en NO_2) associée à la configuration de l'écoulement atmosphérique local.

La figure 3.3.28 présente une comparaison des concentrations modélisées et observées au niveau du sol de tous les nitrates (vapeur d'acide nitrique plus les nitrates particulaires) pour les périodes 1 et 2. Dans le cas de la première période, les valeurs indiquent une sous-estimation moyenne de moins de 10 pour cent (une valeur moyenne observée de 3,64 $\mu g/m^3$ et une valeur moyenne modélisée de 3,35 $\mu g/m^3$) tandis que pour la deuxième période, elles indiquent une sous-estimation moyenne de moins de 4 pour cent (une valeur moyenne observée de 2,58 $\mu g/m^3$ et une valeur moyenne modélisée de 2,68 $\mu g/m^3$). On le constate à l'examen des graphiques. Les pentes des droites de régression contrainte de passer par l'origine sont de 0,92 et de 0,99 pour les périodes 1 et 2, respectivement. Les analyses de régression non contrainte donnent des pentes de 0,92 et 0,84 ainsi que des ordonnées à l'origine de 0,02 $\mu g/m^3$ et de 0,51 $\mu g/m^3$, pour les périodes 1 et 2, respectivement. Les coefficients de détermination R^2 pour les deux périodes sont respectivement de 0,47 et de 0,56.

Les graphiques des séries chronologiques des concentrations moyennes régionales de nitrates pour les régions 3 et 5 au cours des périodes 1 et 2 sont présentés dans la figure 3.3.29. Pour la première période, les données modélisées des deux régions ne reproduisent pas très bien les fluctuations. D'après la vérification des données, les régions 3 et 5 comptaient en moyenne respectivement 10 et 3 stations en fonctionnement au cours de cette période. Le petit nombre de stations n'explique donc pas cette différence. En ce qui a trait à la deuxième période, les graphiques montrent deux pics bien définis, et le modèle les représente bien tous les deux, pour les deux régions, même s'il y a un retard de phase d'environ deux jours entre les deux régions dans le second pic. Étant donné que les nitrates sont facilement lessivés par les précipitations, les fluctuations peuvent être interprétées comme étant des réponses aux précipitations, aux transformations en phase gazeuse et au transport. Les tendances observées au cours de la première période indiquent une météorologie complexe et des précipitations à une échelle inférieure à celle de la grille que la résolution des données d'entrée et de la grille du modèle n'ont pas pu représenter.

La figure 3.3.30 présente un graphique comparatif des concentrations modélisées et observées de nitrates dans les précipitations pour les périodes 1 et 2. Dans le cas des deux périodes, ces concentrations sont sous-estimées. La sous-estimation globale au cours des deux périodes est semblable, soit environ 25 pour cent pour la première période et 20 pour cent pour la deuxième. La concentration moyenne mesurée pour la première période est presque deux fois plus élevée que celle de la deuxième période

(3,07 μg/l par rapport à 1,58 μg/l). Tout comme pour les concentrations de $SO_4^=$ dans les précipitations, on constate une dispersion considérable au cours des deux périodes, ce qui produit un coefficient de détermination R^2 de 0,02 et de 0,1 pour les périodes 1 et 2, respectivement. Étant donné cette faible corrélation, les analyses de régression n'ont que peu de signification.

Les explications de la dispersion fournies pour les concentrations de $SO_4^=$ dans les précipitations s'appliquent également au cas présent.

On a porté sur un graphique les données horaires relatives aux concentrations observées et prévues d'ozone à trois emplacements au cours de la période 1 : (16,18) dans le sud de l'Ontario, représentant une zone de fortes émissions de NO_x; (13,16) dans le nord du Michigan, représentant un emplacement semi-éloigné; (23,19) dans le Maine, représentant un emplacement éloigné. Pour ce qui est de la période 2, les points de grilles (16,18), (14,14) et (23,19) sont présentés. Le point de grille (14,14) est un emplacement de l'Ohio qui correspond aussi à une zone de fortes émissions. Ces graphiques se trouvent à la figure 3.3.31. Pour le point de grille (16,18), on donne des mesures prises à deux emplacements du réseau de surveillance du ministère de l'Environnement de l'Ontario. À North York West, qui fait partie du Toronto métropolitain, la teneur mesurée en ozone est presque tout le temps inférieure à la prévision du modèle. La nuit, les concentrations mesurées d'ozone sont fréquemment nulles malgré le fait qu'un épisode important de teneurs élevées en ozone soit survenu au cours des premiers jours du mois d'août. Ceci est dû au piégeage de l'ozone par le NO qui survient une fois que les réactions photochimiques se soient arrêtées après le coucher du soleil. À l'autre emplacement, Stouffville, qui se trouve à environ trente kilomètres au nord du Toronto métropolitain, les données indiquent des fluctuations diurnes des valeurs mesurées qui sont, pour la majeure partie de la période, plus élevées que les prévisions du modèle. La différence entre les deux emplacements est significative. Ce qui met en évidence qu'il est difficile d'évaluer des modèles lorsque la variabilité est grande à l'échelle d'une fraction de maille. Dans le cas de cette comparaison particulière, les mesures prises à Stouffville devraient être plus représentatives de la région couverte par la maille de la grille du modèle. Par conséquent, le modèle reproduit les fluctuations, mais avec des sous-estimations.

En ce qui concerne le point de grille (13,16), pour la première période, les résultats du modèle concordent avec les mesures quant à l'ordre de grandeur et aux tendances (fluctuations) au cours de la première moitié de la période, et ils sont surestimés par la suite. Les résultats obtenus pour l'emplacement éloigné (23,19) indiquent que les valeurs maximales des concentrations sont bien modélisées sauf pour la période du 4 au 6 août 1988, pour laquelle on constate une surestimation de quelque 25 à 35 pour cent des valeurs maximales. Cette comparaison indique une meilleure performance globale que les deux précédentes.

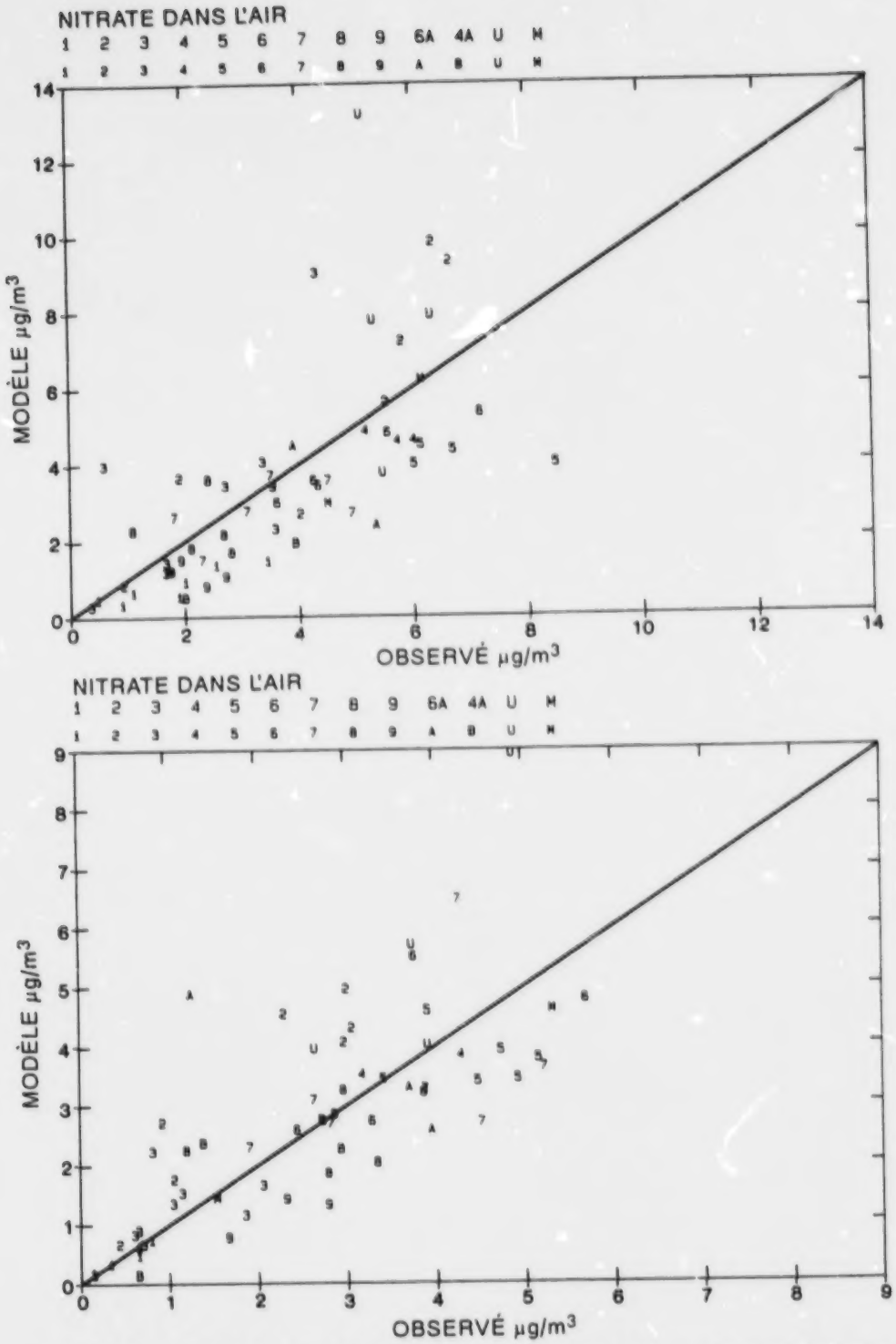
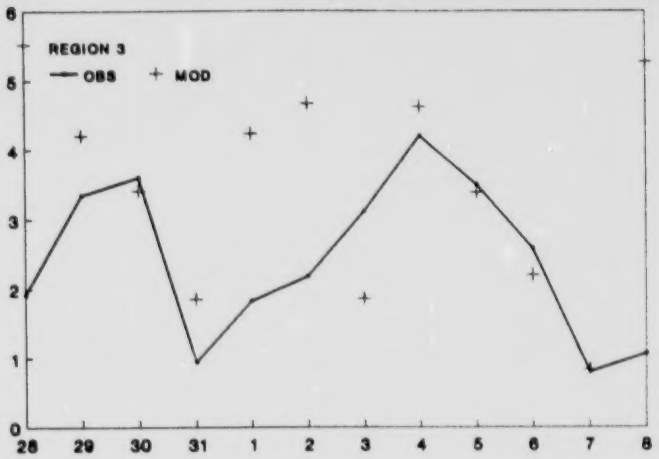
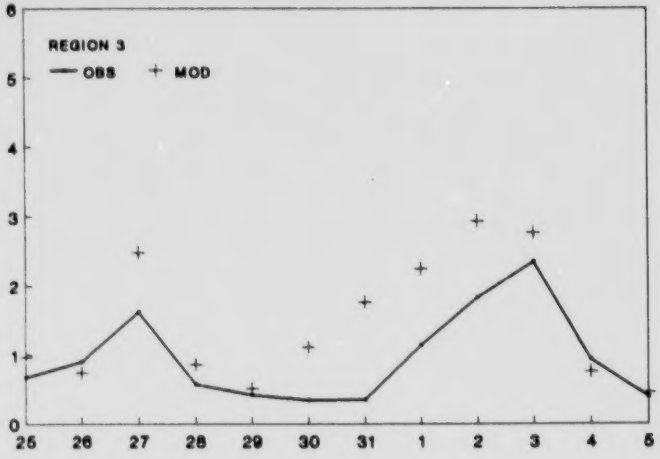
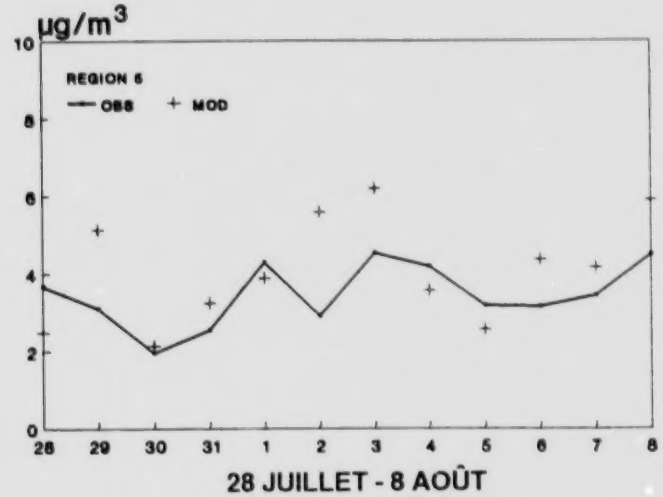


Figure 3.3.28 Prévisions des modèles et concentrations de tous les nitrates ($\mu g/m^3$) observées au niveau du sol du 28 juillet au 8 août et du 25 août au 5 septembre 1988.
Les numéros se rapportent à des régions indiquées sur la figure 3.3.19.

TENDANCE RÉGIONALE DE NITRATE







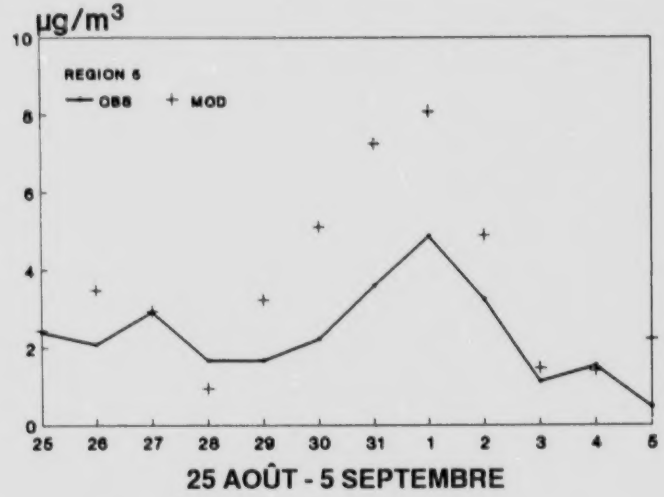


Figure 3.3.29 Graphique des séries chronologiques des concentrations moyennes observées et prévues de nitrates ($\mu g/m^3$) dans les régions 3 et 5 au cours des périodes 1 et 2.

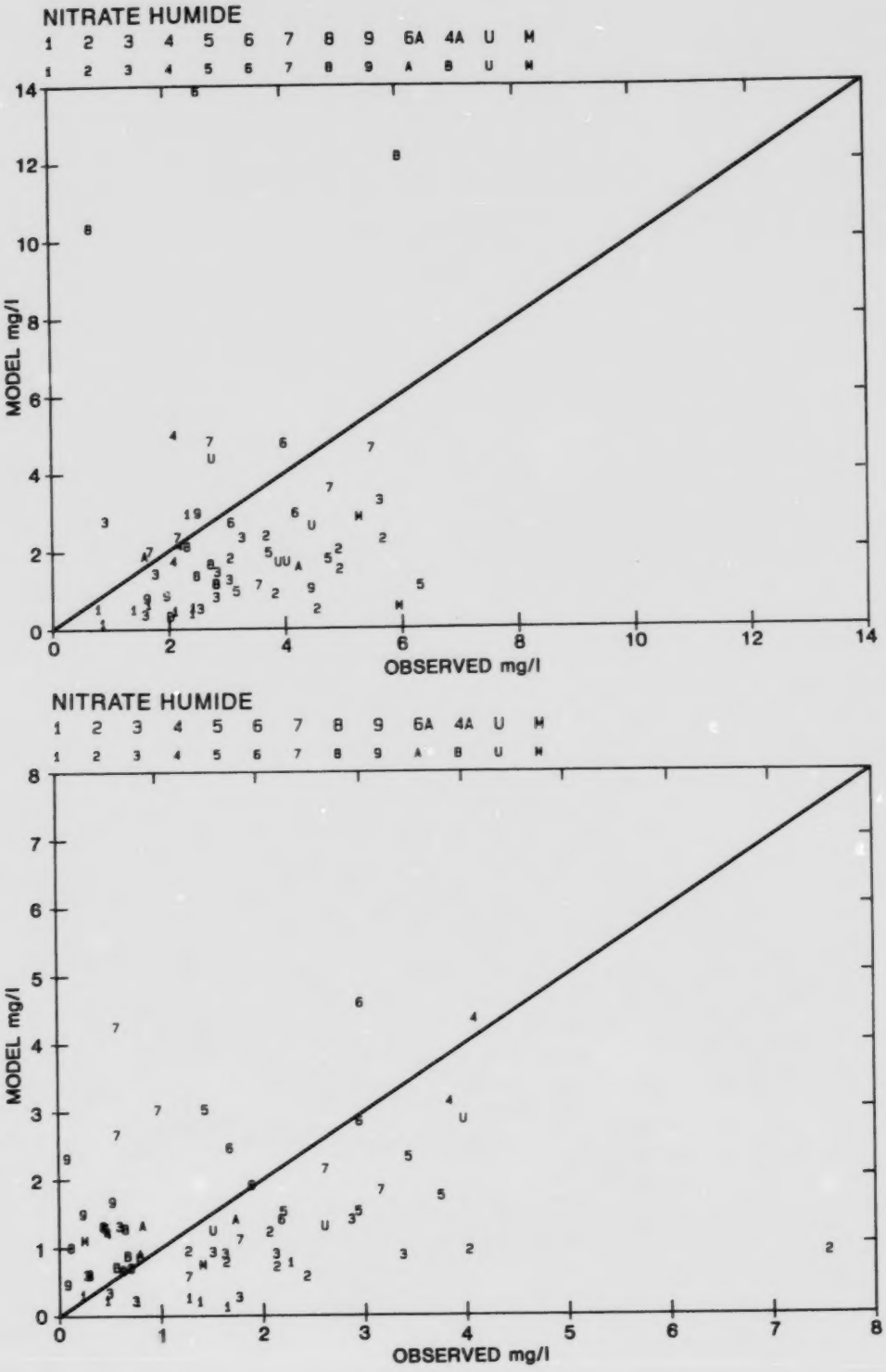


Figure 3.3.30 Prévisions des modèles et concentrations de tous les nitrates (mg/l) observées dans les précipitations du 28 juillet au 8 août et du 25 août au 5 septembre 1988.
Les numéros se rapportent à des régions indiquées sur la figure 3.3.19.

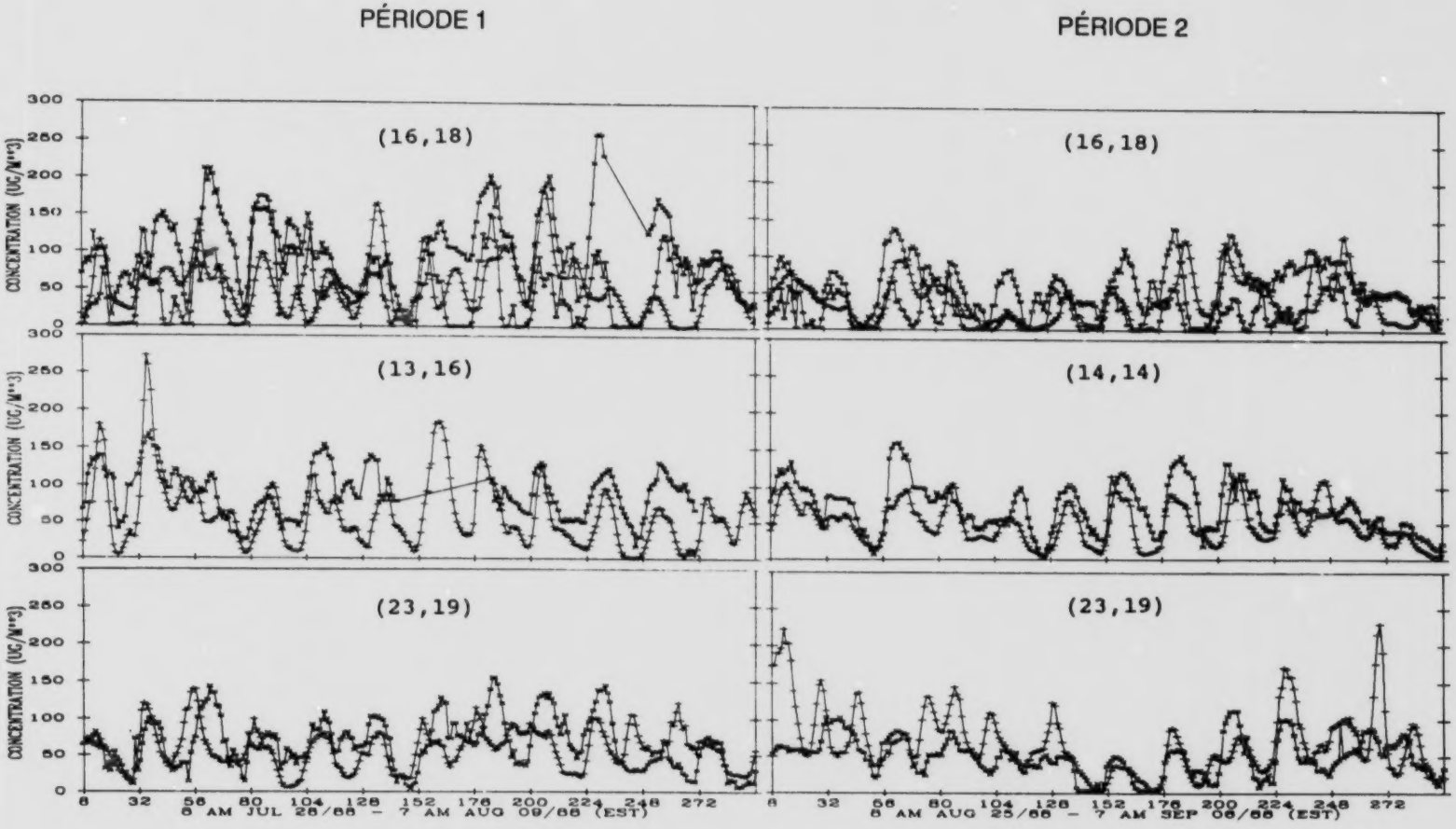


Figure 3.3.31 Prévisions des modèles (tiret) et concentrations d'ozone (x) observées à des emplacements choisis de l'Ontario (16,18), du Michigan (13,13) et du Maine (23,19) pendant la Période 1 (de 28 Juillet à 8 Août) et la Période 2 (de 25 Août à 6 Septembre).

Pour la deuxième période, les résultats de la comparaison sont semblables à ceux de la première : le modèle a produit des sous-estimations des concentrations maximales d'ozone et a bien modélisé les tendances temporelles. En ce qui concerne l'emplacement de l'Ohio (14,14), qui constitue également une zone de fortes émissions, le modèle a constamment produit des sous-estimations mais il a bien représenté les tendances temporelles. Pour ce qui est de l'emplacement éloigné du Maine, le modèle a surestimé toutes les valeurs maximales sauf une au cours de la période.

Interprétation des résultats du modèle ADOM

Huit composés considérés par le modèle ont été évalués. Ce sont les concentrations atmosphériques au niveau du sol de SO_2, de $SO_4^=$, de tout le soufre (SO_2 et $SO_4^=$ particulaire), du NO_2, du NO_3^- et de O_3 ainsi que les concentrations de $SO_4^=$ et de NO_3^- dans les précipitations. Voici la performance du modèle pour ce qui est de ces composés.

SO_2 au niveau du sol - Surestimation moyenne de 10 à 30 pour cent avec surestimation plus importante des valeurs plus faibles. Le modèle explique environ 55 pour cent de la variance.

$SO_4^=$ au niveau du sol - Sous-estimation moyenne de 40 à 60 pour cent avec sous-estimation plus importante des valeurs plus faibles. Le modèle explique environ 65 à 85 pour cent de la variance.

Tout le soufre au niveau du sol - La concentration moyenne modélisée diffère de moins de 8 pour cent de la moyenne observée.

Concentration de $SO_4^=$ dans les précipitations - Les concentrations moyennes pondérées dans les précipitations prévues par le modèle diffèrent de moins de 10 pour cent d'avec les concentrations observées. Le modèle explique moins de 16 pour cent de la variance observée.

NO_2 au niveau du sol - Sous-estimation moyenne de 5 à 20 pour cent. Le modèle explique entre 5 et 47 pour cent de la variance observée.

NO_3^- au niveau du sol - Sous-estimation moyenne de moins de 10 pour cent. Le modèle explique environ 50 pour cent de la variance.

NO_3^- dans les précipitations - Sous-estimation moyenne de 20 à 25 pour cent. Le modèle explique moins de 10 pour cent de la variance observée.

O_3 au niveau du sol - Valeurs maximales sous-estimées dans les zones de fortes émissions et reproduction de leur ordre de grandeur dans les zones éloignées.

L'importante dispersion associée aux concentrations dans les précipitations peut résulter en majeure partie d'une discordance fondamentale de la représentation spatiale. À moins qu'une nouvelle méthode de traitement des précipitations à l'échelle d'une fraction de maille soit élaborée ou que la période de calcul des moyennes soit allongée ou que la densité des emplacements de mesure soit grandement accrue à l'intérieur de chaque maille, pour produire une moyenne à l'échelle d'une maille, nous ne pouvons faire que peu de choses pour améliorer les résultats des comparaisons.

Étant donné la grande incertitude qui existe dans les mesures des concentrations atmosphériques des composés de l'azote, la présente simulation montre que le modèle ADOM fonctionne assez bien pour les composés de l'azote (en particulier dans le cas de la deuxième période). Une analyse de sensibilité qui a été rendue nécessaire en raison d'une erreur (voir le paragraphe 3 ci-dessous) montre que les nitrates atmosphériques réagissent de façon linéaire à un changement dans les émissions de NO.

Diverses hypothèses ont été formulées pour expliquer les différences entre les concentrations atmosphériques de SO_2 et de $SO_4^=$. D'abord, on a observé que la concentration moyenne de tout le soufre dans les précipitations et que celle des sulfates dans les précipitations ne comporte qu'un très faible biais systématique. Ceci suggère, sans toutefois le prouver, que la quantité de soufre dans le domaine est convenable. Il importe donc d'examiner la question de la transformation du SO_2 en $SO_4^=$. Voici les possibilités qui ont été avancées.

1. **Absence de nuages non propices aux précipitations, ce qui peut constituer un facteur important dans la transformation en $SO_4^=$.** Toutefois, des analyses de sensibilité montrent que l'ajout, dans le modèle, de nuages non propices aux précipitations n'a pas un effet unidirectionnel sur les concentrations au niveau du sol, car ces nuages entraînent en outre un transport vertical.

2. **Données de mesure des concentrations de $SO_4^=$ au niveau du sol contaminées par le brouillard.** D'après l'étude de l'étendue du brouillard et de la conception des appareils de surveillance, la contamination des données par le brouillard n'est pas une cause possible de la différence.

3. **L'apport de NO considéré par le modèle est incorrect.** Puisque les oxydants constituent un facteur limitatif pour les réactions en phase gazeuse des composés de l'azote et du soufre, qui se font concurrence, un trop grand apport de NO réduirait la concentrations d'oxydants diminuant ainsi la transformation du SO_2 en $SO_4^=$. Cette possibilité a été explorée et a mené à la découverte d'une erreur dans les émissions de NO (ces dernières étaient trop élevées d'environ 30 %). Cependant, une fois le problème corrigé (présente simulation), la performance du modèle concernant les composés de l'azote s'est améliorée mais elle n'a pas changé sensiblement pour ce qui est du $SO_4^=$.

4. **Teneur en oxydants trop faible.** Il a déjà été souligné que les concentrations maximales d'ozone ont été l'objet de sous-estimations dans les zones de fortes émissions où les émissions locales de NO_x ne prédominent pas. Il en résulte une sous-production de radicaux OH qui se traduit par une lente transformation du SO_2 en $SO_4^=$.

5. **Mauvaise constante de vitesse de réaction entre SO_2 et OH.** La possibilité précédente (n° 4) est fondée sur l'utilisation de la bonne vitesse de réaction. Puisque les deux modèles ADOM et RADM se comportent de façon semblable en ce qui a trait au SO_2 et au $SO_4^=$, (résultats préliminaires obtenus par R. Dennis (U.S. EPA) et J. Chang (SUNY)), il semblerait qu'un facteur commun au deux modèles, qui produit ainsi des résultats similaires, serait la constante de vitesse de réaction. Une augmentation de la constante de vitesse de réaction ferait que les modèles ADOM et RADM transformeraient le SO_2 en $SO_4^=$ plus rapidement. En revanche, cette constante de vitesse a été étudiée longuement, et la valeur utilisée dans les modèles courants est celle sur laquelle des experts se sont entendus. Cette valeur devrait donc être correcte.

6. **Absence d'un facteur important dans les réactions en phase gazeuse.** L'utilisation des résultats des modèles pour le diagnostic de certaines relations entre la source et le récepteur n'est pas nouvelle. En fait, on a tout récemment tenté de cerner le problème lié aux émissions de NO (voir n° 3). Il est possible qu'un mécanisme qui n'est pas très bien connu, comme la relation entre SO_2 et H_2O_2, soit une voie importante de transformation du SO_2 en $SO_4^=$.

Les trois dernières possibilités seront étudiées encore plus.

3.3.5.g COMPARAISON PRÉLIMINAIRE DES MODÈLES LINÉAIRES ET DES MODÈES EXHAUSTIFS

On se pose maintenant la question suivante : Les modèles exhaustifs sont-ils meilleurs que les modèles linéaires simples? Pour répondre à cette question, on a utilisé le modèle linéaire lagrangien du ministère ontarien de l'Environnement (OME) en se servant des données sur le vent, sur les précipitations et sur les émissions totales utilisées par le modèle ADOM au cours de la période EMEFS. Les figures 3.3.32 à 3.3.34 présentent les concentrations de SO_2 et de $SO_4^=$ au niveau du sol et les concentrations de $SO_4^=$ dans les précipitations prévues par le modèle linéaire lagrangien. Ce modèle a surestimé les concentrations atmosphériques de SO_2 par environ 110 pour cent (la droite de régression contrainte de passer par l'origine a une pente de 2,1) alors que les concentrations atmosphériques de $SO_4^=$ sont dispersées autour de la droite de pente unitaire. Dans le cas du $SO_4^=$ dans les précipitations, la pente de la droite de régression contrainte de passer par l'origine est d'environ 0,87, ce qui indique une sous-estimation de 10 à 15 pour cent.

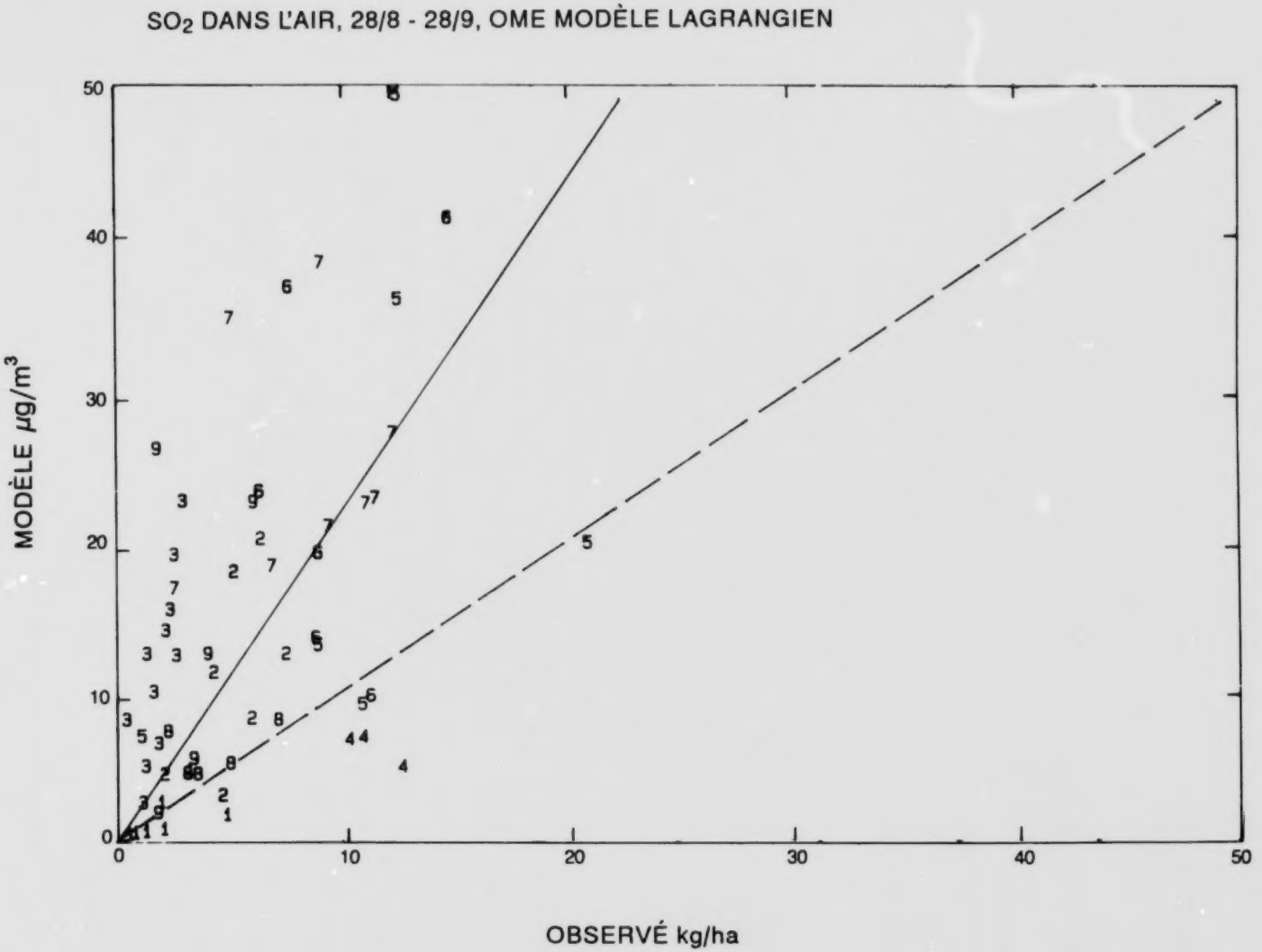


Figure 3.3.32 Prévisions du modèle lagrangien du ministère ontarien de l'Environnement pour la période d'évaluation EMEFS - SO_2 ($\mu g/m^3$).
Les numéros se rapportent à des régions indiquées sur la figure 3.3.19.

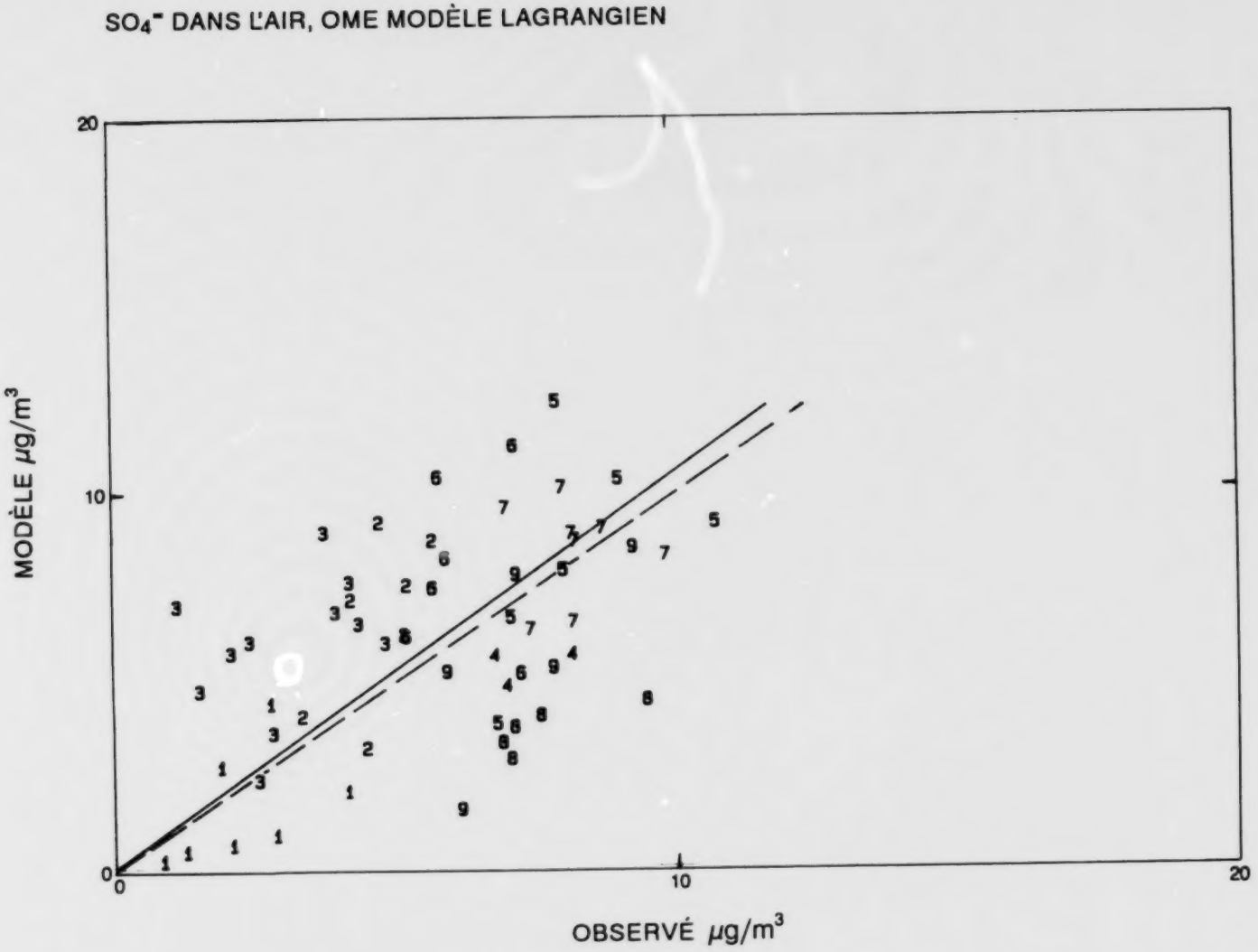


Figure 3.3.33 Prévisions du modèle lagrangien du ministère ontarien de l'Environnement pour la période d'évaluation EMEFS - $SO_4^=$ ($\mu g/m^3$).
Les numéros se rapportent à des régions indiquées sur la figure 3.3.19.

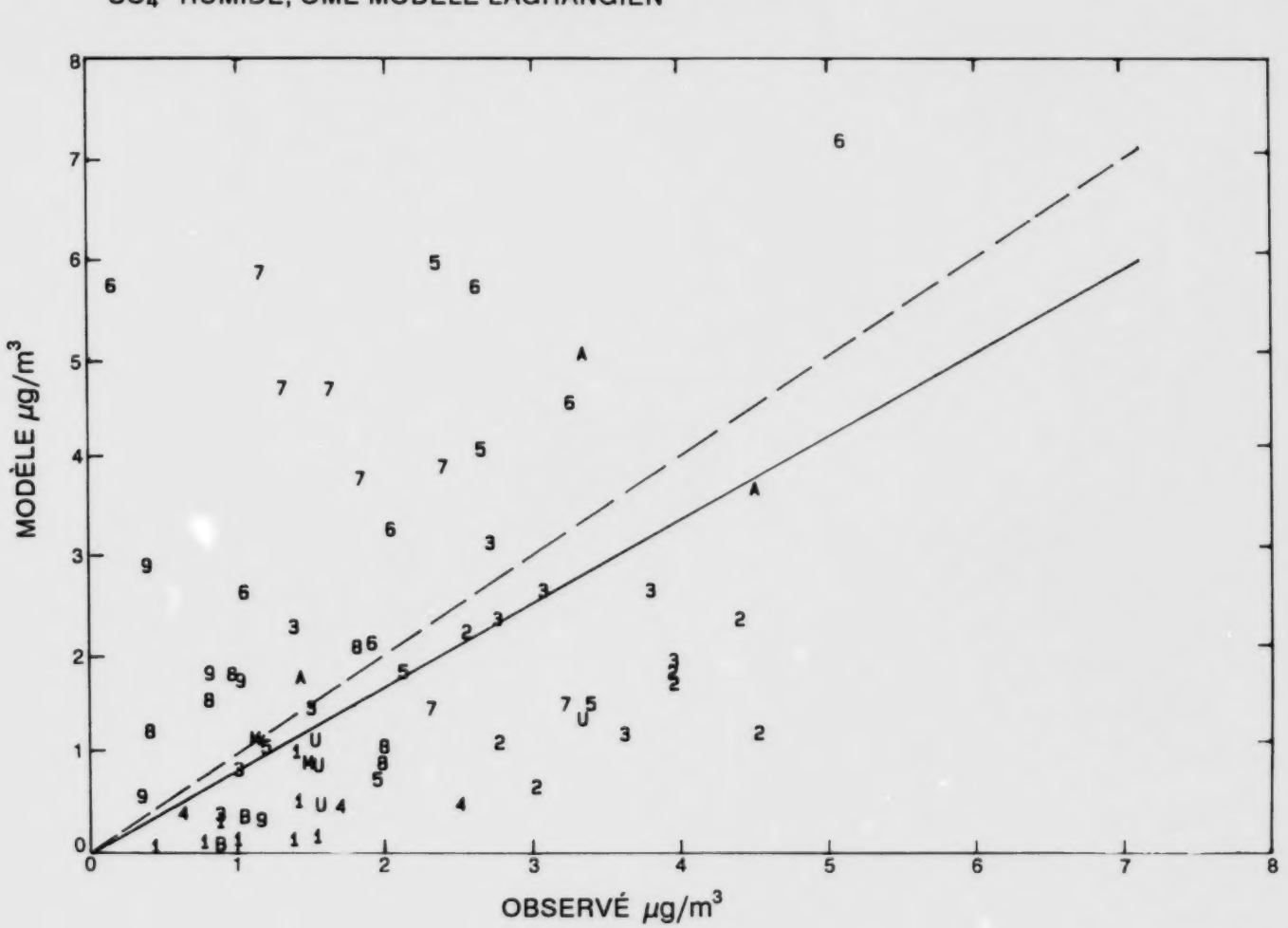


Figure 3.3.34 Prévisions du modèle lagranagien du ministère ontarien de l'Environnement pour la période d'évaluation EMEFS - $SO_4^=$ (mg/l).
Les numéros se rapportent à des régions indiquées sur la figure 3.3.19.

Les modèles linéaires lagrangiens sont habituellement assez simples pour que certaines valeurs paramétriques puissent être ajustées en vue de modifier leur performance. En ce qui concerne le modèle OME, les paramètres qui influeront sur la performance sont : la hauteur de mélange, la vitesse de transformation du SO_2 en $SO_4^=$, les coefficients de lessivage des dépôts humides et les vitesses de formation des dépôts secs.

L'ajustement de la hauteur de mélange dans le modèle OME influera sur tous les composés en changeant le volume dans lequel les composés se dispersent. Dans le cas présent, on a utilisé une hauteur de mélange moyenne quotidienne de 800 m correspondant aux conditions automnales.

La vitesse de transformation du SO_2 en $SO_4^=$ changera le rapport $SO_2/SO_4^=$ en fonction de la distance par rapport à la source. Une vitesse de transformation accrue se traduira par une décroissance plus rapide du rapport $SO_2/SO_4^=$ en fonction de la distance par rapport à la source et vice versa. La configuration spatiale des deux composés sera modifiée.

Le coefficient de lessivage utilisé dans ce modèle pour le $SO_4^=$ (3×10^{-4}) surpasse d'un ordre de grandeur celui qui est utilisé pour le SO_2. Ces coefficients peuvent être ajustés indépendamment l'un de l'autre. Lorsqu'on ajuste le coefficient de lessivage du SO_2, il est évident qu'il influera sur la quantité de SO_2 disponible pour la transformation en $SO_4^=$ ainsi que sur la répartition spatiale du SO_2. Considérant l'ordre de grandeur relatif des coefficients de lessivage du SO_2 et du $SO_4^=$, on s'attendrait à ce que le même pourcentage de changement apporté aux deux coefficients ait davantage d'effet sur le $SO_4^=$, mais l'effet réel est plus compliqué que cela. Au cours de fortes précipitations, le SO_2 et le $SO_4^=$ peuvent être lessivés rapidement et ne subsister qu'en faibles quantités pour un lessivage subséquent. Dans ce cas, la quantité lessivée ne dépend pratiquement pas de la valeur des coefficients de lessivage.

La vitesse de formation des dépôts secs utilisée par le modèle est de 5 mm/s pour le SO_2 et de 0,5 mm/s pour le $SO_4^=$. Par conséquent, un changement de la vitesse de formation des dépôts secs de SO_2 influerait directement sur le SO_2. Toutefois, il aurait aussi un effet sur le $SO_4^=$ parce que le SO_2 se transforme en $SO_4^=$. Les deux composés seraient donc touchés.

La discussion précédente expose les possibilités d'amélioration de la performance des modèles linéaires lagrangiens; toutefois, ces améliorations ne sont pas facilement réalisables. Puisqu'un paramètre donné peut influer sur les concentrations de SO_2 et de $SO_4^=$, il faut changer plusieurs paramètres en même temps pour obtenir une amélioration simultanée des prévisions des concentrations dans l'air et dans les précipitations.

Étant donné les erreurs systématiques observées dans les concentrations prévues par les modèles lagrangiens, on pourrait considérer les ajustements paramétriques suivants:

1) augmenter la hauteur de la couche de mélange et diminuer ainsi les concentrations atmosphériques de SO_2 et de $SO_4^=$;

2) accroître la vitesse de transformation du SO_2 en $SO_4^=$ en vue de réduire l'erreur systématique positive dans les concentrations atmosphériques de SO_2 ainsi que toute erreur systématique négative dans les concentrations atmosphériques de $SO_4^=$ due à l'augmentation de la hauteur de la couche de mélange;

3) ajuster les vitesses de formation des dépôts secs et les taux de lessivage des dépôts humides pour faire concorder davantage le modèle avec les données.

Il reste à savoir si un modèle linéaire lagrangien conçu pour modéliser les concentrations atmosphériques de SO_2 et de $SO_4^=$ et les concentrations de $SO_4^=$ dans les précipitations avec peu d'erreur systématique (après ajustement) est meilleur qu'un modèle exhaustif. Cette question peut se diviser en deux parties : 1) Le modèle linéaire lagrangien, ou, en fait, tous les modèles linéaires lagrangiens sont-ils plus performants? et 2) Les modèles linéaires lagrangiens sont-ils de meilleurs outils scientifiques?

Puisqu'il n'est possible de comparer les résultats obtenus à l'aide du modèle lagrangien que dans le cas de trois composés (SO_2 et $SO_4^=$ dans l'air et $SO_4^=$ dans les dépôts humides), on peut obtenir trois bons résultats et en sacrifiant la performance en ce qui a trait aux dépôts secs ou à la répartition verticale des composés. Par exemple, l'augmentation de la hauteur de la couche limite requise pour réduire les concentrations atmosphériques de SO_2 se traduira par une quantité plus importante de SO_2 à des niveaux plus élevés. De plus, tout ensemble de paramètres ajustés serait particulier à la répartition et à l'importance des sources considérées. Ainsi, la bonne performance du modèle pourrait se limiter aux conditions spécifiques envisagées. En outre, comme on peut le constater en comparant la performance du modèle linéaire avec celle du modèle exhaustif (ex. : figure 3.3.20 avec figure 3.3.32, figure 3.3.21 avec figure 3.3.33), ce dernier produit une dispersion inférieure à celle du modèle linéaire. Il a été noté que le modèle linéaire lagrangien OME produit un champ plus régulier (Misra et al., 1989) que le modèle exhaustif. Le modèle exhaustif a donc une meilleure résolution que les modèles linéaires.

Il est facile de répondre à la deuxième question, à savoir quel modèle est le meilleur outil scientifique. Afin d'améliorer la performance du modèle linéaire lagrangien en ce qui a trait aux trois composés examinés, il faut accorder une importance extrême aux valeurs paramétriques, et cela, sans autre justification que celle de la bonne apparence des résultats. Cela est difficilement justifiable du point de vue scientifique. L'autre

caractéristique d'un bon modèle scientifique est sa capacité de répondre à des questions et de réagir à différentes situations (c'est-à-dire à différentes sources réparties de différentes façons). Un modèle dont les fondements physiques et chimiques sont limités et qui est ajusté aux conditions présentes, ne convient pas aussi bien à des fins scientifiques.

Le modèle ADOM a été utilisé avec succès comme outil diagnostique dans le cas des émissions de NO. Ce qui a permis son utilisation à cette fin, c'est la confiance que les modélisateurs accordent au modèle, car il tient compte des connaissances actuelles au sujet des processus impliqués dans le transport à grande distance des polluants acidifiants. Dans le cadre des efforts déployés pour expliquer les sous-estimations des concentrations atmosphériques de $SO_4^=$ par ADOM et par RADM, nous trouverons peut-être que des processus qui ont été négligés jusqu'à présent ou dont on ignore encore les principes sont importants, améliorant ainsi notre compréhension. De cette façon, les modèles exhaustifs peuvent effectivement contribuer à l'étude des précipitations acides.

Dans l'ensemble, la performance et l'utilité scientifique des modèles linéaires sont limitées par leur contenu et leurs fondements. En revanche, les modèles exhaustifs fournissent un cadre propice aux améliorations futures et peuvent fournir une bonne réponse pour les bonnes raisons.

3.3.6 DISCUSSION ET CONCLUSION

Les modèles mathématiques représentent l'outil le plus efficace pour établir les liens entre la source et le récepteur. Cependant, comme il a été montré dans le présent chapitre, leurs résultats ne sont pas sans incertitude. Il faut donc interpréter les relations source-récepteur tout en tenant compte de ces incertitudes. Par conséquent, les effets relatifs d'un changement par rapport à un scénario de base représentant les émissions ont davantage de signification que les résultats absolus du modèle.

De nombreux facteurs contribuent à l'incertitude des résultats des modèles (Demerjian, 1985, 1986). Premièrement, l'élaboration du modèle est fondée sur diverses hypothèses qui peuvent introduire des erreurs systématiques dans les résultats. Deuxièmement, la connaissance des paramètres d'entrée d'un modèle n'est pas toujours complète. Troisièmement, le nombre de variables utilisées pour élaborer un modèle est habituellement beaucoup plus faible que le nombre requis pour l'élaboration d'un modèle "parfait". Ainsi, les variables manquantes peuvent prendre des combinaisons infinies de valeurs pour un ensemble donné de valeurs attribuées aux variables choisies, ce qui cause des incertitudes dans les résultats. Quatrièmement, il y a incompatibilité entre les moyennes spaciales calculées par le modèle et les données observées. Ainsi, il est logique de supposer que la façon appropriée de calculer les moyennes spaciales dans un modèle, c'est de les effectuer sur les mêmes superficies qu'on le ferait pour les données météorologiques d'entrée. Or, en Amérique du Nord, les résultats des modèles constituent des moyennes spaciales représentant des surfaces carrées d'environ 100 km de côté, alors qu'on ne dispose généralement que d'un ou deux emplacements de mesure à l'intérieur de ces mailles carrées. Finalement, les données d'entrée (météorologiques, géophysiques) et les données observées comportent elles-mêmes des incertitudes.

Il est possible d'examiner les incertitudes liées aux modèles en comparant les résultats des ces derniers avec les observations. La plupart des modèles linéaires peuvent expliquer environ 50 pour cent de la variance dans le cas des dépôts humides de soufre observés (c'est-à-dire que la valeur R^2 de la régression entre les observations et les résultats des modèles est d'environ 0,5). Il s'ensuit que 50 pour cent de la variance non expliquée peut être attribuée aux incertitudes des modèles et des données. L'article publié par Fay et al., (1985), fournit une indication de l'origine de la majeure partie de cette incertitude. En utilisant des données sur les précipitations réelles et des concentrations atmosphériques de soufre produites par un modèle, ces scientifiques ont pu expliquer jusqu'à 80 pour cent de la variabilité dans les dépôts de soufre observés. Ceci indique que la variabilité des quantités de précipitations est la cause de la majeure partie de la variabilité des données observées et que, à moins que les ensembles de données d'entrée ne comprennent des données précises sur les quantités de précipitations, les résultats des modèles ne peuvent que comporter une incertitude correspondante. Des expériences effectuées à l'aide de modèles eulériens plus complets confirment cette conclusion. Une partie importante du manque de correspondance entre

modèles et les observations peut être attribuée aux erreurs dans les quantités de précipitations. Ellenton et al. (1988) ont utilisé un modèle linéaire lagrangien pendant quatre ans en fixant les valeurs des émissions de SO_2 à celles de 1980 et en variant les données météorologiques d'année en année. Il en ont conclu que la majeure partie de la variabilité des observations pouvait être attribuée à la variabilité des données météorologiques. Streets et al. (1985) et Samson (1986) en sont arrivés à des conclusions semblables après avoir utilisé des modèles différents.

Bloxam et al. (1986) ont utilisé un modèle lagrangien en faisant varier aléatoirement le coefficient de lessivage et en ont conclu que les variations aléatoires de ce paramètre en fonction de l'espace et du temps contribuent au plus à 20 pour cent de l'incertitude des résultats du modèle. Au cours de l'exercice découlant du MDI, les observations ont été comparées aux résultats de plusieurs modèles qui ont été utilisés sur des ensembles de paramètres très différents. Tous ces modèles ont fait preuve de capacités similaires à expliquer les différences par rapport aux observations. Au cours d'une comparaison subséquente plus poussée (ISDME), on a conservé pratiquement les mêmes données d'entrée pour les différents modèles. Encore une fois, ces derniers ont montré des capacités relatives comparables.

Lorsqu'on utilise un modèle pour étudier les incidences de scénarios prévoyant les émissions futures, on se sert de données météorologiques fixes établies pour une année "type". Ainsi, même si le modèle était "parfait", les résultats des scénarios seraient incertains pour les raisons discutées ci-dessus. Les prévisions absolues d'un modèle dans le cadre d'un scénario donné sont moins utiles pour la prise de décisions que les effets relatifs déterminés selon différents scénarios. À ce sujet, tous les modèles linéaires prévoient qu'un pourcentage de changement uniforme dans le niveau actuel des émissions se traduira par un pourcentage de changement similaire dans les dépôts annuels de soufre en Amérique du Nord (sauf en ce qui concerne les dépôts de fond dus à des sources qui ne font pas partie de l'inventaire). Les prévisions de ces modèles linéaires peuvent être différentes lorsque la réduction des émissions vise des régions sources particulières. Cependant, tous les modèles prévoient des pourcentages de contribution par les régions sources qui sont approximativement les mêmes.

Ainsi, bien que la précision (incertitude) des modèles soit utile pour comprendre leur performance, elle ne l'est pas tellement pour les études de scénarios de réduction des émissions. Toutefois, la capacité d'un modèle à prévoir la tendance qui sera effectivement suivie par les dépôts de soufre selon le niveau des émissions constitue, en essence, le facteur le plus important pour la prise de décisions. Par exemple, on peut se représenter trois relations différentes entre les niveaux des émissions de SO_2 et les dépôts humides de soufre. Selon le degré de non-linéarité auquel on peut s'attendre dans les processus atmosphériques, les dépôts humides de soufre peuvent ne pas varier dans le cas d'une large gamme de réductions des émissions de SO_2, ils peuvent diminuer selon un taux moindre que celui des émissions ou ils peuvent augmenter avec la réduction des émissions. D'après toute l'information disponible, la seconde tendance

susmentionnée entre les émissions de SO_2 et les dépôts humides de soufre est la plus réaliste. La première, soit aucun changement dans les dépôts par suite d'un changement dans les émissions de SO_2, est possible mais rarement observée. La troisième tendance ne peut se justifier dans le cas des composés du soufre en raison de la loi de la conservation de la masse.

Selon les données expérimentales et les expériences effectuées avec les modèles eulériens complexes, en Amérique du Nord, lorsque les données météorologiques sont gardées constantes, une diminution du taux des émissions s'accompagne toujours d'une diminution des dépôts humides de soufre. Toutefois, la diminution est inférieure au pourcentage de réduction des émissions. Par exemple, d'après une expérience menée avec le modèle eulérien ADOM au cours du mois d'avril 1981, une réduction uniforme de 50 pour cent des émissions de SO_2 en Amérique du Nord entraînera un changement de 30 à 40 pour cent dans les dépôts humides de soufre à l'intérieur du même domaine. On ne s'attend pas à ce que le caractère non linéaire de la réaction des dépôts humides de $SO_4^=$ à une réduction de 50 % des émissions de SO_2 répartie sur une année ou plus ne dépasse cet ordre de grandeur. C'est la conclusion à laquelle en sont venus les scientifiques qui ont participé à la conférence internationale du NAPAP tenue à Hilton Head Island, en Caroline du Sud, en février 1990 (Venkatram et al., 1989). La relation entre les émissions de SO_2 et les dépôts humides de soufre est donc non linéaire. Cependant, lorsque l'on tient compte de la précision des modèles et de l'incertitude des observations, le degré de non-linéarité n'est pas assez important pour contredire les conclusions tirées jusqu'à présent d'après les modèles linéaires, surtout lorsqu'on considère tous les dépôts (secs et humides). D'autres comparaisons des modèles eulériens tridimensionnels avec les données complètes de EMEFS, devraient jeter plus de lumière sur cette question.

En résumé, les exercices de modélisation effectués jusqu'à maintenant appuient les énoncés suivants.

1. Une réduction des émissions de SO_2 de 50 pour cent par rapport au niveau actuel réduira de 30 à 40 pour cent les dépôts humides de soufre qui se forment au printemps dans le sud du Canada et le nord-est des États-Unis. Il n'existe aucune preuve que la quantité de dépôts humides de soufre restera inchangée ou s'accroîtra par suite d'une réduction des émissions de SO_2. Lorsqu'on considère tous les dépôts de soufre, l'effet de non-linéarité est amoindri par la réponse presque linéaire des dépôts secs à la réduction des émissions.

2. Il est probable que la réduction des émissions que l'on se propose de réaliser dans quelques États clés des É.-U. sera plus bénéfique qu'une réduction générale des émissions de SO_2 aux É.-U.

3. L'incertitude liée aux résultats de la plupart des modèles est d'un facteur 2 tout au plus et les causes importantes en sont l'incertitude des données d'entrée et les variables manquantes dans le modèle.

4. La majeure partie de la variabilité dans les données sur les dépôts humides de soufre observés peut être attribuée à la variabilité météorologique. On ne peut donc pas s'attendre à observer une réduction des dépôts humides de soufre immédiatement après une réduction des émissions de SO_2. Cependant, à long terme, il est évident qu'il faut s'attendre à ce que les dépôts humides de soufre suivent une tendance décroissante.

ANNEXES

ANNEXE 3A

MEILLEURE ESTIMATION DES DÉPÔTS SECS PAR RAPPORT AUX DÉPÔTS TOTAUX DANS L'EST DU CANADA

LISTE DES FIGURES DE L'ANNEXE 3A

FIGURE n°		PAGE
3A-1	Meilleure estimation de la fraction de tous les dépôts de soufre constituée de dépôts secs (%).	3-220
3A-2	Meilleure estimation de la fraction de tous les dépôts de NO_3^- (sauf les dépôts secs de NO_2) constituée de dépôts secs (%).	3-221

ANNEXE 3A

MEILLEURE ESTIMATION DES DEPÔTS SECS PAR RAPPORT AUX DÉPÔTS TOTAUX SUR L'EST DU CANADA

Les dépôts se produisent grâce à trois processus : l'élimination par la pluie et la neige (dépôts humides), l'adsorption directe des particules et des gaz à la surface de la terre (dépôts secs) et les dépôts associés aux gouttelettes de brouillard. Dans la cadre des estimations qui suivent, nous n'avons pas tenu compte des dépôts par les gouttelettes de brouillard, bien que dans les régions situées en montagnes ainsi que le long de la côte est, ils peuvent représenter une fraction substantielle du total des dépôts (Barrie et Schemenauer, 1986).

Soufre

La figure 3A-1 présente les estimations de la fraction de l'ensemble des dépôts de soufre qui est constituée de dépôts secs (FD); elles sont fondées sur deux ensembles de données : les données du réseau APIOS du ministère de l'Environnement de l'Ontario, obtenues pour 1984 à 1986, et celles du réseau APN d'Environnement Canada, obtenues pour 1979 à 1982. Les dépôts humides sont mesurés directement, tandis que les dépôts secs sont calculés à partir du produit d'une concentration atmosphérique mensuelle par une vitesse estimative de production des dépôts secs dans une région de 100 km de rayon autour d'un site de mesure. La concentration dans l'air combine la contribution du SO_2 gazeux et des matières particulaires de $SO_4^=$. Les vitesses de formation des dépôts secs sont calculées à l'aide de la méthode de Voldner et al. (1986) et font l'objet d'un rapport et d'une discussion dans Sirois et Barrie (1988).

Les résultats indiquent que la proportion de dépôts secs varient entre 8,5 % et 37 %. Le plus fort pourcentage a été observé à Long Point parce que la moitié de la superficie sur laquelle les dépôts secs ont été calculés (rayon de 100 km autour du site) est recouverte d'eau; celle-ci présente un piège efficace pour le SO_2 gazeux. En général, les dépôts secs ont représenté environ 15 % des dépôts totaux. En raison de l'incertitude de l'estimation des vitesses de formation des dépôts secs, il est impossible de déduire pour le moment une variation spatiale significative des dépôts secs pour l'est du Canada qui ait quelque crédibilité. Ceci ne signifie pas que cette variation spatiale n'existe pas, mais seulement que la résolution de nos observations et de nos estimations est trop faible pour la déceler. Néanmoins, il est juste de dire que la plus grande partie des dépôts totaux de soufre sur l'est du Canada sont des dépôts humides.

Azote

Il existe trois formes d'azote qui sont suffisamment solubles ou réagissent suffisamment avec les surfaces pour jouer un rôle dans la formation des dépôts secs et humides : le

NO_3 particulaire, le HNO_3 gazeux et le NO_2 gazeux. Puisqu'on ne dispose de pratiquement aucune mesure du NO_2, ce composé n'est pas compris dans la présente estimation des dépôts secs. D'après des données préliminaires, Sirois et Barrie (1988) estiment que la fraction des dépôts secs qui se compose de NO_2 varie tout probablement entre 35 % et 88 %. Les estimations des dépôts secs qui ne tiennent pas compte des NO_2 constituent donc une limite inférieure. La figure 3A-2 présente ces estimations dans le cas des deux réseaux (APIOS et APN). Les dépôts secs et humides d'azote ont été calculés de façon semblable aux dépôts secs et humides de soufre.

Il y a une différence entre la façon dont le ministère de l'Environnement de l'Ontario (OME) a estimé les dépôts secs et celle qu'a adoptée Environnement Canada (AES). Il y a plusieurs explications à cela. Le modèle OME a supposé que tout le NO_3^- était sous la forme de HNO_3, alors que le modèle AES a calculé les dépôts secs à partir du HNO_3 et du NO_3^- particulaire. Puisque la vitesse de formation des dépôts de HNO_3 est beaucoup plus élevée que celle des dépôts du NO_3^- particulaire, les estimations du modèle OME sont plus élevées. Ceci ne peut cependant justifier que 20 % à 30 % de la différence observée (OME et APIOS), car la plupart des dépôts secs sont sous forme de HNO_3. Une autre explication est que les concentrations de HNO_3 mesurées par le ministère de l'Environnement de l'Ontario sont en moyenne de 30 à 40 % supérieures à celles qui ont été déterminées par le Service de l'environnement atmosphérique (communication personnelle de A. Wiebe, 1989). En outre, il existe des différences dans la façon dont les vitesses de formation des dépôts ont été calculées. L'information dont on dispose actuellement suggèrent deux possibilités fondées i) sur les estimations du modèle OME et ii) les estimations du modèle AES. Dans le premier cas, les dépôts secs (contributions du NO_2 exclues) représentent 40 %; dans le deuxième, ils représentent 20 %. Étant donné que le NO_2 contribue à 50 % et plus aux dépôts secs (tel que discuté ci-dessus), ceci porte les pourcentage à 60 % et à 30 %, respectivement. Cet écart constitue probablement une représentation réaliste de l'incertitude liée aux estimations des dépôts secs de nitrates.

Résumé

À l'heure actuelle, d'après les données disponibles, les dépôts secs de soufre à l'échelle régionale peuvent être estimés de façon appropriée, à partir des données relativement détaillées sur la chimie des précipitations au Canada, en supposant que la fraction des dépôts totaux de soufre composée de dépôts secs est de 0,15. Ce chiffre peut ne pas s'appliquer là où il y a d'importantes sources locales d'émissions de soufre, notamment les fonderies de Sudbury et de Noranda. Il est possible d'obtenir de meilleures estimations des dépôts secs lorsque les concentrations atmosphériques sont disponibles. Au Canada, puisque la fraction des dépôts totaux constituée de dépôts secs est relativement petite, on ne s'attend pas à ce que les incertitudes liées à la contribution des dépôts secs changent de façon marquée les conclusions des travaux sur les effets aquatiques et terrestres.

L'incertitude liée à la contribution des dépôts secs associés aux composés de l'azote est beaucoup plus grande, quoiqu'elle ne puisse actuellement pas être évaluée complètement, en raison du manque de données de surveillance, notamment en ce qui a trait au NO_2. Malheureusement, dans le cas des oxydes d'azote, la contribution des dépôts secs aux dépôts totaux pourrait être comparable à la contribution des dépôts humides d'après les quelques données disponibles.

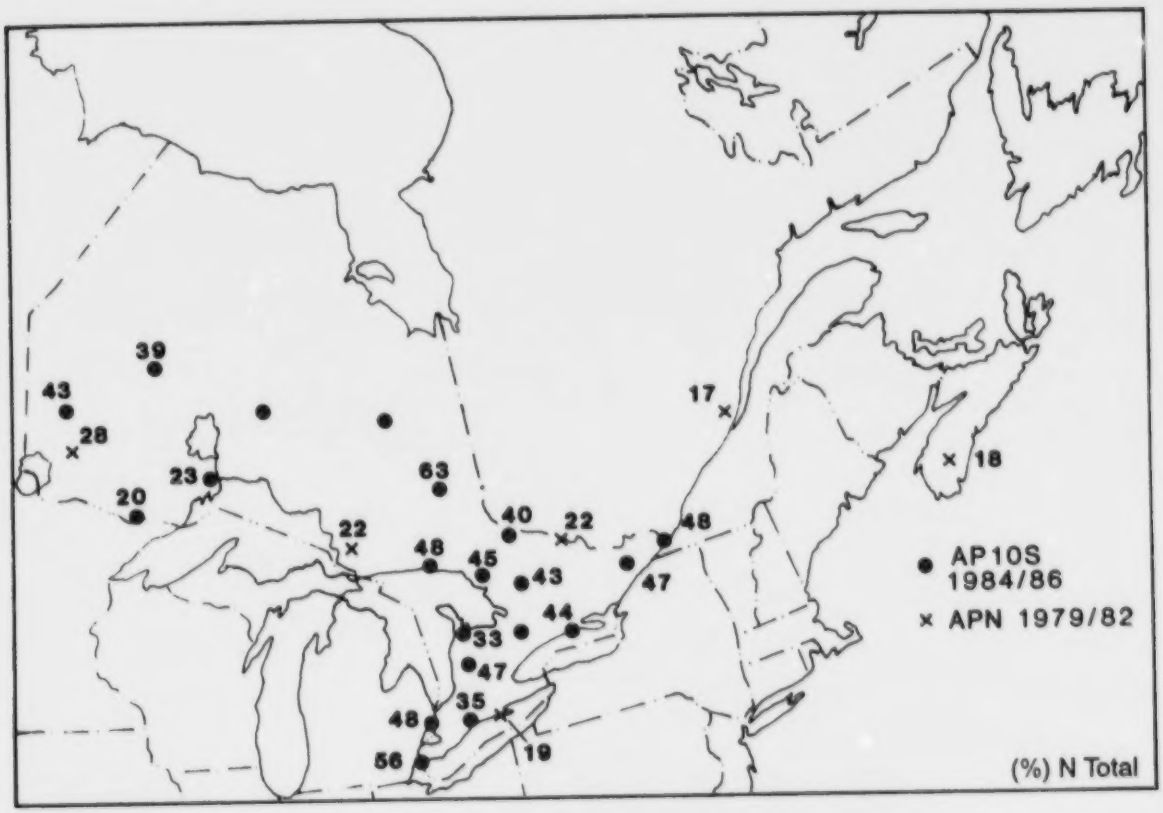


Figure 3A-1 Meilleure estimation de la fraction de tous les dépôts de soufre constituée de dépôts secs (%).

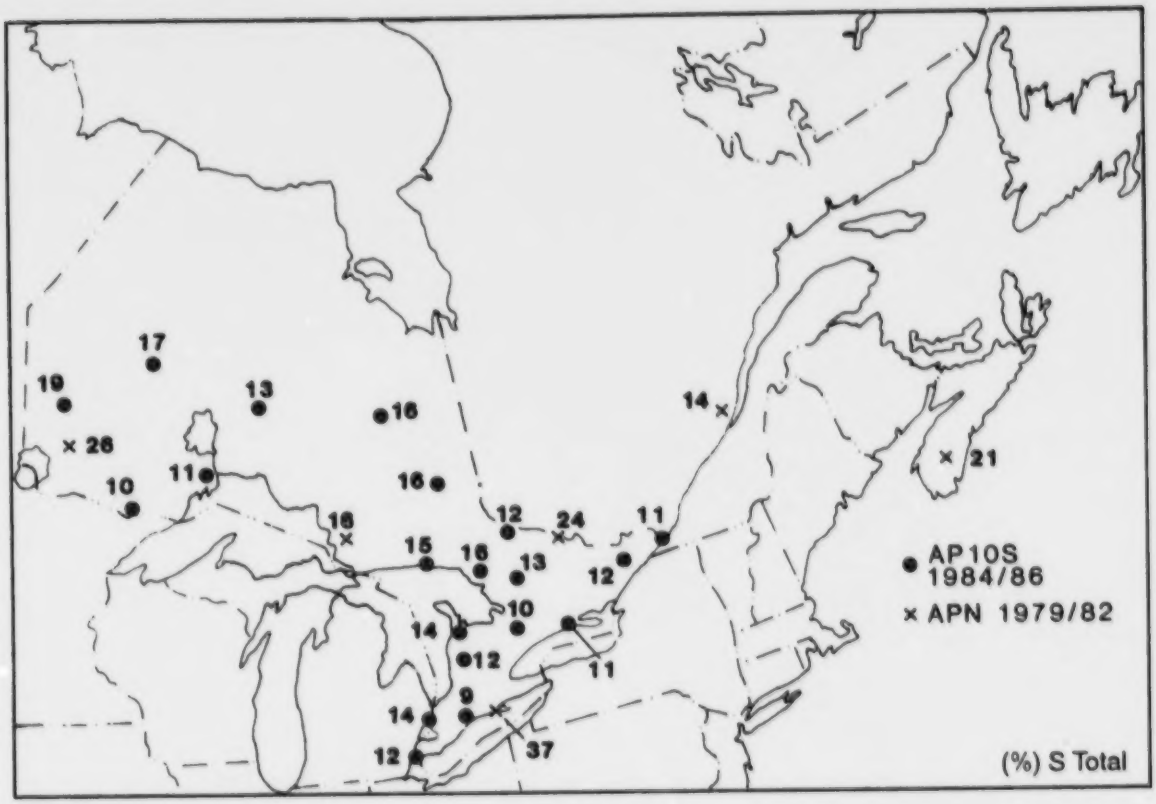


Figure 3A-2 Meilleure estimation de la fraction de tous les dépôts de NO_3^- (sauf les dépôts secs de NO_2) constituée de dépôts secs (%).

ANNEXE 3B

RÉPARTITIONS DES CONCENTRATIONS ET DES DÉPÔTS

LISTE DES FIGURES DE L'ANNEXE 3B

FIGURE n°		PAGE
3B-1	Répartitions des précipitations annuelles - Concentrations moyennes pondérées de $SO_4^{=}$ (mg/l) : 1980 à 1983.	3-230
3B-2	Répartitions des précipitations annuelles - Concentrations moyennes pondérées de $SO_4^{=}$ (mg/l) : 1984 à 1987.	3-231
3B-3	Répartitions des dépôts humides annuels de $SO_4^{=}$ (kg/ha/année) : 1980 à 1983.	3-232
3B-4	Répartitions des dépôts humides annuels de $SO_4^{=}$ (kg/ha/année) : 1984 à 1987.	3-233
3B-5	Répartitions des précipitations annuelles - Concentrations moyennes pondérées de NO_3^- (mg/l) : 1980 à 1983.	3-234
3B-6	Répartitions des précipitations annuelles - Concentrationsmoyennes pondérées de NO_3^- (mg/l) : 1984 à 1987.	3-235
3B-7	Répartitions des dépôts humides annuels de NO_3^- (kg/ha/année) : 1980 à 1983.	3-236
3B-8	Répartitions des dépôts humides annuels de NO_3^- (kg/ha/année) : 1984 à 1987.	3-237
3B-9	Répartitions de la répartition annuelle moyenne du pH : 1980 à 1983.	3-238
3B-10	Répartitions de la répartition annuelle moyenne du pH : 1984 à 1987.	3-239
3B-11	Répartitions des précipitations annuelles - Concentrations moyennes pondérées de H^+ (mg/l) : 1980 à 1983.	3-240
3B-12	Répartitions des précipitations annuelles - Concentrations moyennes pondérées de H^+ (mg/l) : 1984 à 1987.	3-241
3B-13	Répartitions des dépôts humides annuels de H^+ (kg/ha/année) : 1980 à 1983.	3-242
3B-14	Répartitions des dépôts humides annuels de H^+ (kg/ha/année) : 1984 à 1987.	3-243
3B-15	Répartitions des précipitations annuelles - Concentrations moyennes pondérées de NH_4^+ (mg/l) : 1980 à 1983.	3-244

LISTE DES FIGURES (suite)

FIGURE n°		PAGE
3B-16	Répartitions des précipitations annuelles - Concentrations moyennes pondérées de NH_4^+ (mg/l) : 1984 à 1987.	3-245
3B-17	Répartitions des dépôts humides annuels de NH_4^+ (kg/ha/année) : 1980 à 1983.	3-246
3B-18	Répartitions des dépôts humides annuels de NH_4^+ (kg/ha/année) : 1984 à 1987.	3-247
3B-19	Répartitions des précipitations annuelles - Concentrations moyennes pondérées de Ca^{+2} (mg/l) : 1980 à 1983.	3-248
3B-20	Répartitions des précipitations annuelles - Concentrations moyennes pondérées de Ca^{+2} (mg/l) : 1984 à 1987.	3-249
3B-21	Répartitions des dépôts humides annuels de Ca^{+2} (kg/ha/année) : 1980 à 1983.	3-250
3B-22	Répartitions des dépôts humides annuels de Ca^{+2} (kg/ha/année) : 1984 à 1987.	3-251
3B-23	Répartitions des précipitations annuelles - Concentrations moyennes pondérées de Mg^{+2} (mg/l) : 1980 à 1983.	3-252
3B-24	Répartitions des précipitations annuelles - Concentrations moyennes pondérées de Mg^{+2} (mg/l) : 1984 à 1987.	3-253
3B-25	Répartitions des dépôts humides annuels de Mg^{+2} (kg/ha/année) : 1980 à 1983.	3-254
3B-26	Répartitions des dépôts humides annuels de Mg^{+2} (kg/ha/année) : 1984 à 1987.	3-255
3B-27	Répartitions des précipitations annuelles - Concentrations moyennes pondérées de Cl^- (mg/l) : 1980 à 1983.	3-256
3B-28	Répartitions des précipitations annuelles - Concentrations moyennes pondérées de Cl^- (mg/l) : 1984 à 1987.	3-257
3B-29	Répartitions des dépôts humides annuels de Cl^- (kg/ha/année) : 1980 à 1983.	3-258
3B-30	Répartitions des dépôts humides annuels de Cl^- (kg/ha/année) : 1984 à 1987.	3-259
3B-31	Répartitions des précipitations annuelles - Concentrations moyennes pondérées de Na^+ (mg/l) : 1980 à 1983.	3-260

LISTE DES FIGURES (suite)

FIGURE n°		PAGE
3B-32	Répartitions des précipitations annuelles - Concentrations moyennes pondérées de Na^+ (mg/l) : 1983 à 1987.	3-261
3B-33	Répartitions des dépôts humides annuels de Na^+ (kg/ha/année) : 1980 à 1983.	3-262
3B-34	Répartitions des dépôts humides annuels de Na^+ (kg/ha/année) : 1984 à 1987.	3-263
3B-35	Répartitions des précipitations annuelles - Concentrations moyennes pondérées de K^+ (mg/l) : 1980 à 1983.	3-264
3B-36	Répartitions des précipitations annuelles - Concentrations moyennes pondérées de K^+ (mg/l) : 1984 à 1987.	3-265
3B-37	Répartitions des dépôts humides annuels de K^+ (kg/ha/année) : 1980 à 1983.	3-266
3B-38	Répartitions des dépôts humides annuels de K^+ (kg/ha/année) : 1984 à 1987.	3-267
3B-39	Répartitions de la hauteur des précipitations totales (cm) : 1980 à 1983.	3-268
3B-40	Répartitions de la hauteur des précipitations totales (cm) : 1984 à 1987.	3-269
3B-41	Répartitions de la moyenne calculée sur six ans des concentrations et des dépôts de $SO_4^=$ (1982 à 1987).	3-270
3B-42	Répartition du pH moyen calculé sur six ans (1982 à 1987).	3-271
3B-43	Répartitions de la moyenne calculée sur six ans des concentrations et des dépôts de NH_4^+ (1982 à 1987).	3-272
3B-44	Répartitions de la moyenne calculée sur six ans des concentrations et des dépôts de Ca^{+2} (1982 à 1987).	3-273
3B-45	Répartitions de la moyenne calculée sur six ans des concentrations et des dépôts de Mg^{+2} (1982 à 1987).	3-274
3B-46	Répartitions de la moyenne calculée sur six ans des concentrations et des dépôts de Cl^- (1982 à 1987).	3-275

LISTE DES FIGURES (suite)

FIGURE n°		PAGE
3B-47	Répartitions de la moyenne calculée sur six ans des concentrations et des dépôts de Na^+ (1982 à 1987).	3-276
3B-48	Répartitions de la moyenne calculée sur six ans des concentrations et des dépôts de K^+ (1982 à 1987).	3-277

ANNEXE 3B

RÉPARTITIONS DES CONCENTRATIONS ET DES DÉPÔTS

i) RÉPARTITIONS ANNUELLES DES CONCENTRATIONS ET DES DÉPÔTS MOYENS PONDÉRÉS EN FONCTION DES PRÉCIPITATIONS (1980 à 1987)

La présente annexe contient des cartes qui montrent les répartitions annuelles des concentrations et des dépôts humides moyens pondérés en fonction des précipitations pour le $SO_4^=$, NO_3^-, pH, H^+, NH_4^+, Ca^{++}, Mg^{++}, Na^+, Cl^- et K^+. Le chapitre 3.2.2.b du texte présente une description des données, du programme d'interpolation et des résultats.

Les cartes sont présentées dans les figures 3B-1 à 3B-40.

ii) RÉPARTITIONS MOYENNES SUR SIX ANS (1982 À 1987) DES CONCENTRATIONS ET DES DÉPÔTS MOYENS PONDÉRÉS EN FONCTION DES PRÉCIPITATIONS

Les répartitions moyennes sur six ans (1982 à 1987) des concentrations et des dépôts humides moyens pondérés en fonction des précipitations sont présentées dans des cartes pour ce qui est du $SO_4^=$, du pH (concentrations seulement), du NH_4^+, de Ca^{++}, de Mg^{++}, de Na^+, de Cl^- et de K^+. Il faut s'en remettre au texte pour la description des données, la méthode d'interpolation et de calcul des moyennes. Ces cartes constituent les figures 3B-41 à 3B-48.

Voici le résumé des principales caractéristiques des répartitions des concentrations et des dépôts dans le cas de chacun des ions.

$SO_4^=$

Les répartitions des concentrations et des dépôts de $SO_4^=$ présentées à la figure 3B-41 sont semblables à ceux du $SO_4^=$ en excès, sauf le long de la côte atlantique. Les différences reflètent le fait qu'on n'a pas apporté de correction pour tenir compte de la contribution du sel marin au $SO_4^=$ (ces corrections varient de 0 dans les régions intérieures à 21 % à des emplacements le long de la côte). Il en résulte que les répartitions montrent des concentrations et des dépôts de $SO_4^=$ supérieurs à ceux du $SO_4^=$ en excès dans les provinces et les États de l'Atlantique.

NH_4^+

Les valeurs élevées des concentrations (0,3 mg/l) et des dépôts (4,0 kg/ha/année) de NH_4^+ ont été observées dans une région comprenant le sud du Manitoba, de l'Ontario et du Québec ainsi que des parties des grandes plaines des É.-U. et du Midwest (figure 3B-43). Les terres de cette région sont utilisées principalement pour l'agriculture, ce qui suggère que le bétail et les engrais influent énormément sur la composition des précipitations. Cette hypothèse semble confirmée par les valeurs locales des concentrations et des dépôts (0,5 mg/l et 4,0 kg/ha/année), respectivement, observées dans les régions où l'activité agricole est intensive, soit le sud-ouest de l'Ontario, le Dakota du Sud, le Nebraska et l'Iowa.

Ca^{++}

Les répartitions des concentrations et des dépôts de Ca^{++} présentées à la figure 3B-44 sont remarquablement semblables à ceux de l'ammonium. Les plus fortes concentrations moyennes calculées sur six ans (0,2 mg/l) ont été observées au Manitoba, dans le sud de l'Ontario, dans les grandes plaines américaines et dans un certain nombre d'États du Midwest. En fait, l'isoplèthe de 2 mg/l comprend presque les mêmes régions agricoles de l'est du Canada et des États-Unis que l'isoplèthe de 0,3 mg/l correspondant au NH_4^+; cela reflète sans aucun doute, l'effet important sur la chimie des précipitations des matières utilisées pour les sols agricoles. La répartition des dépôts de Ca^{++} montre deux valeurs maximales locales (3 kg/ha/année), observées toutes deux dans des régions où l'activité agricole est intensive. L'une se situe dans le sud-ouest de l'Ontario, et l'autre, dans la région de l'Iowa, du Kansas et du Missouri.

Mg^{++}

Les valeurs maximales des concentrations et des dépôts de Mg^{++} ont été observées le long de la côte atlantique du Canada et des États-Unis ainsi que dans les régions agricoles du sud de l'Ontario et du Midwest américain (figure 3B-45). Les répartitions reflètent l'effet important du magnésium provenant des sels marins (le magnésium étant parmi les constituants élémentaires de l'eau de mer brute celui qui vient au troisième rang par son importance, après le Na^+ et le Cl^- - Rahn, 1976) et de l'activité agricole (le magnésium étant un constituant majeur des poussières du sol).

Na^+ et Cl^-

Les répartitions du Cl^- et du Na^+ (figures 3B-46 et 3B-47) montrent que les valeurs maximales des concentrations et des dépôts se trouvent le long de la côte atlantique; ces valeurs décroissent ensuite de façon draconienne pour devenir faibles à environ 100 km à l'intérieur des terres. Les répartitions représentent très bien l'effet des sels marins sur la chimie des précipitations côtières.

K^+

Les concentrations et les dépôts de K^+ sont très faibles dans presque tout l'est de l'Amérique du Nord (figure 3B-48). Les valeurs les plus élevées (0.05 mg/l et 0,6 kg/ha/année) ont été observées le long de la côte est, ce qui reflète probablement l'effet du sel de mer.

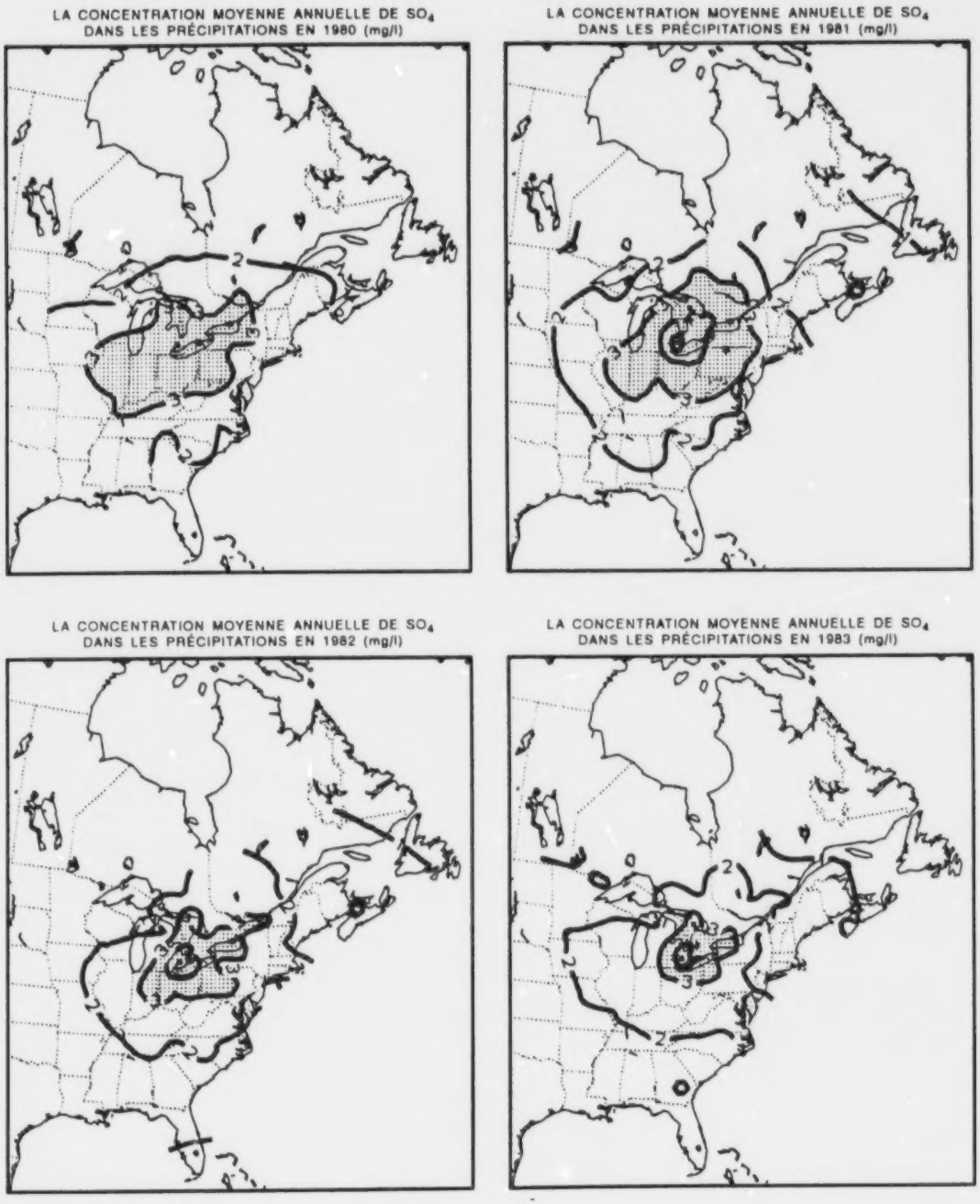


Figure 3B-1 Répartitions des précipitations annuelles - Concentrations moyennes pondérées de $SO_4^=$ (mg/l) : 1980 à 1983.

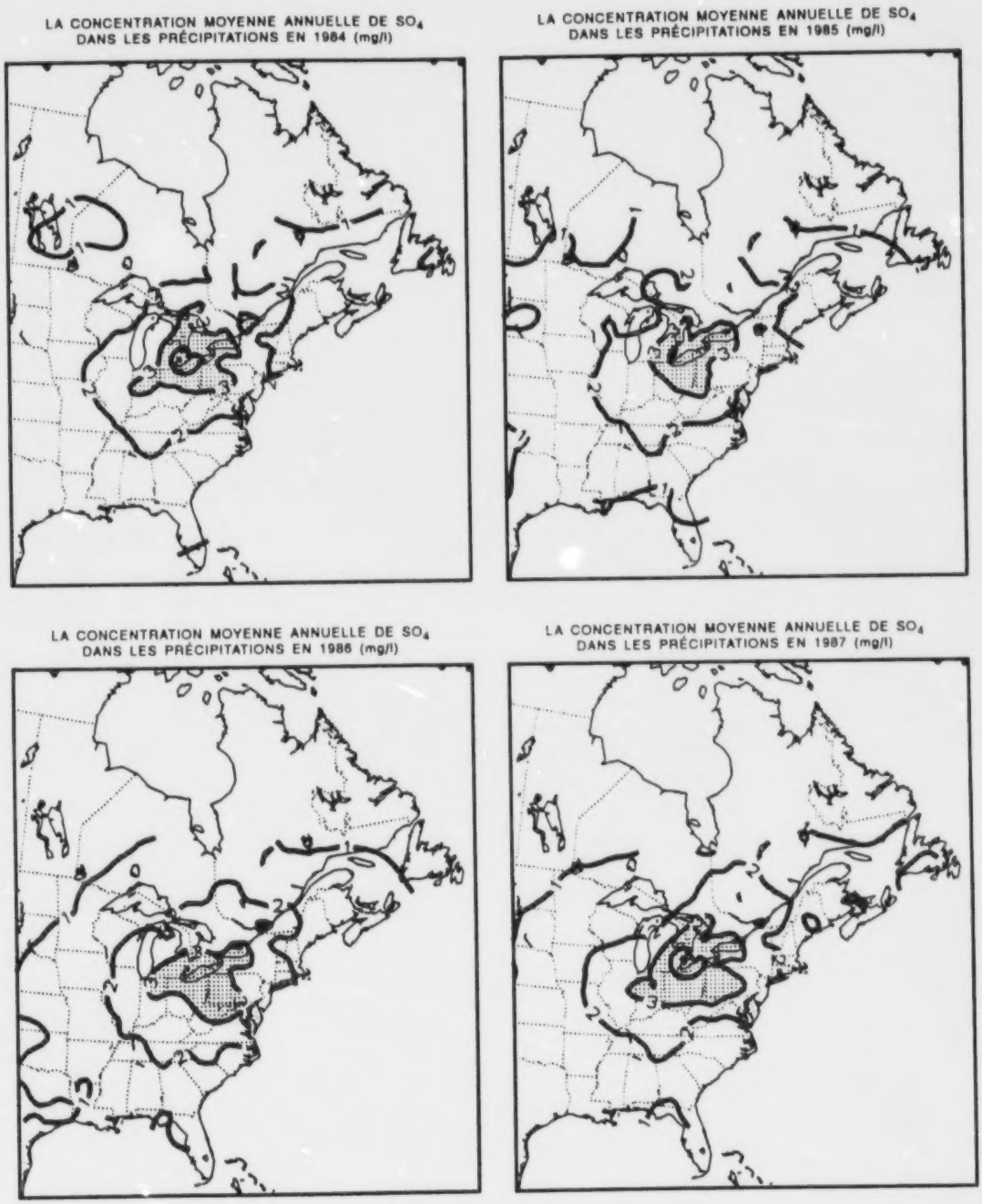


Figure 3B-2 Répartitions des précipitations annuelles - Concentrations moyennes pondérées de $SO_4^=$ (mg/l) : 1984 à 1987.

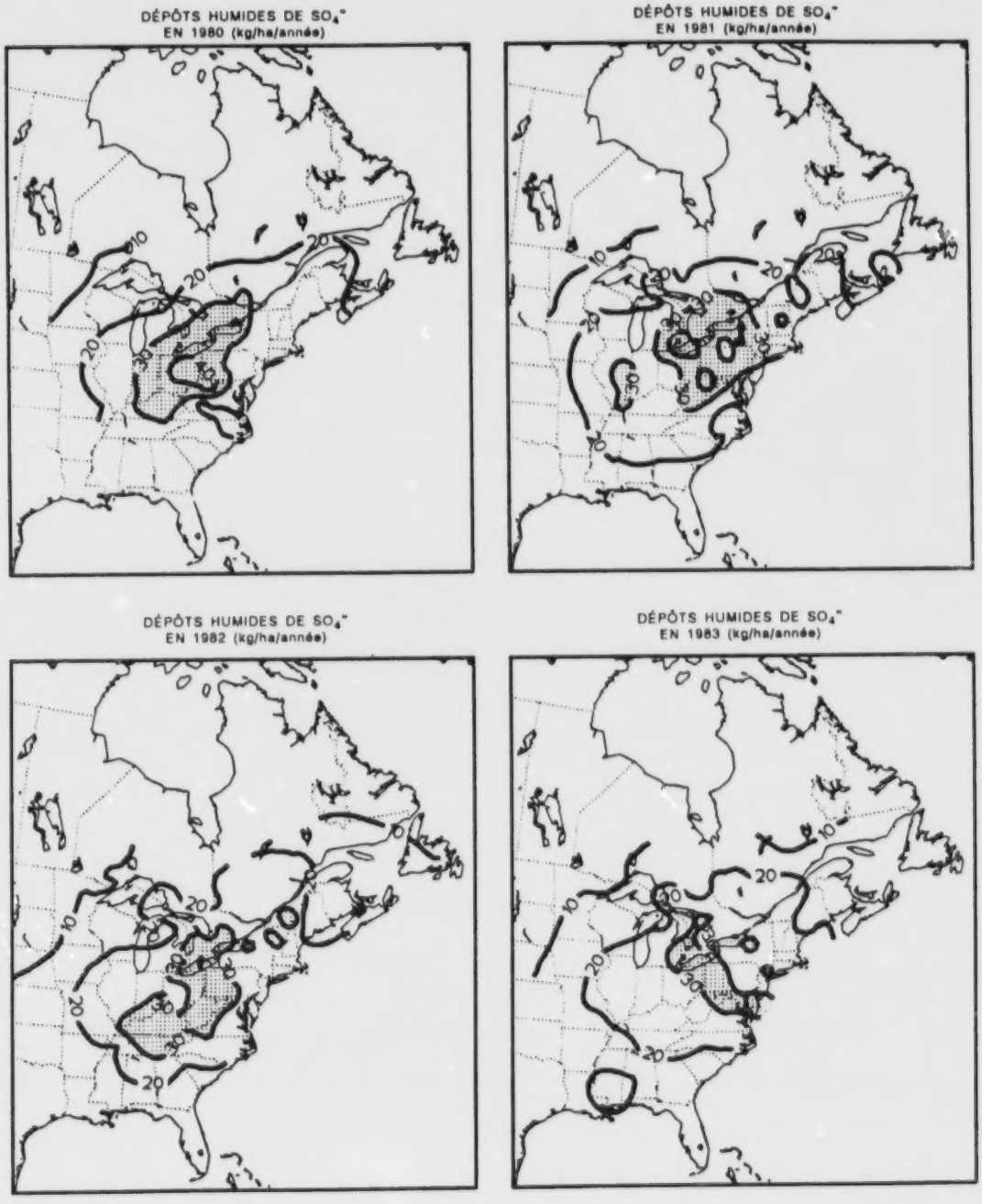


Figure 3B-3 Répartitions des dépôts humides annuels de $SO_4^=$ (kg/ha/année) : 1980 à 1983.

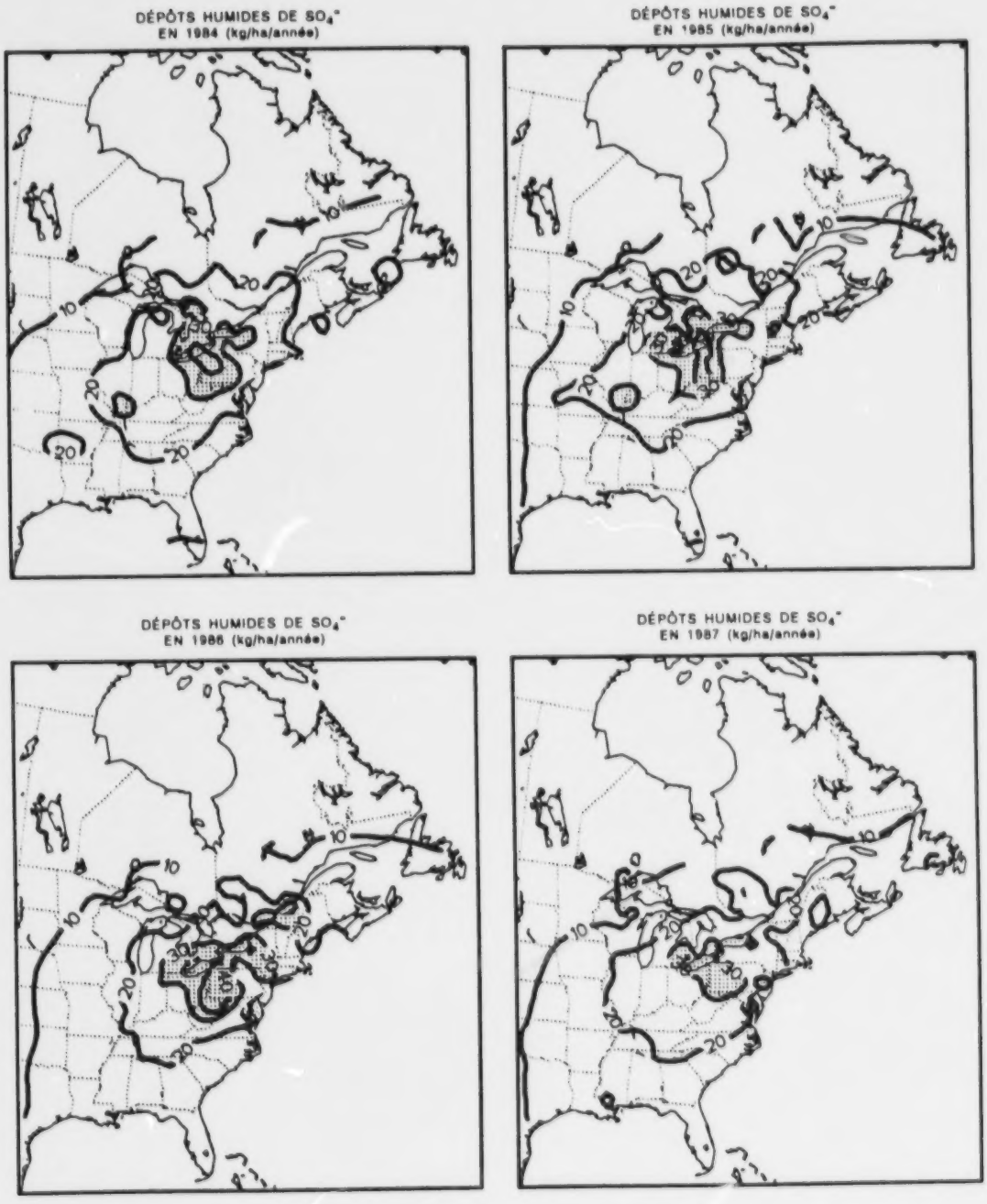


Figure 3B-4 Répartitions des dépôts humides annuels de $SO_4^=$ (kg/ha/année) : 1984 à 1987.

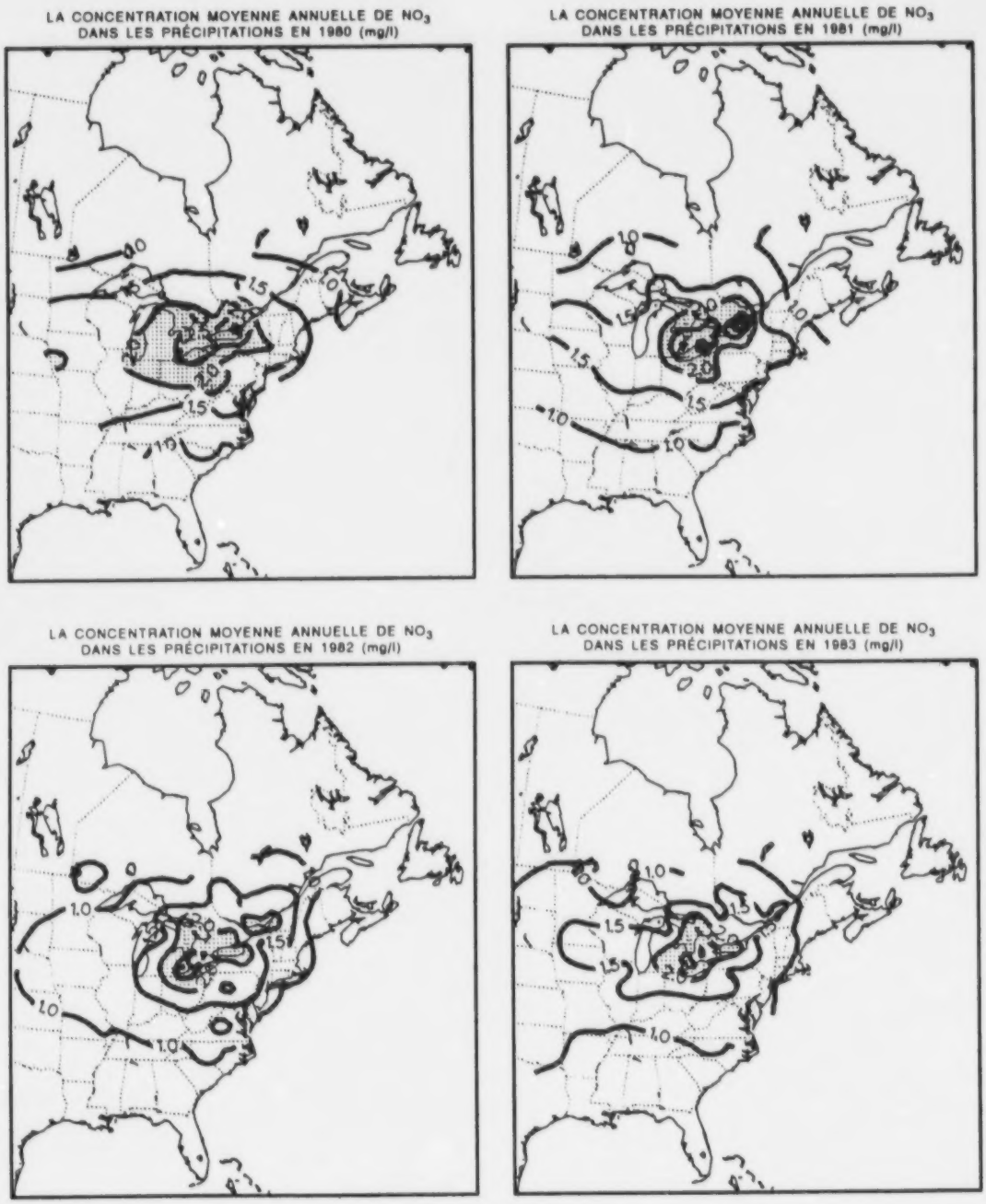


Figure 3B-5 Répartitions des précipitations annuelles - Concentrations moyennes pondérées de NO_3^- (mg/l) : 1980 à 1983.

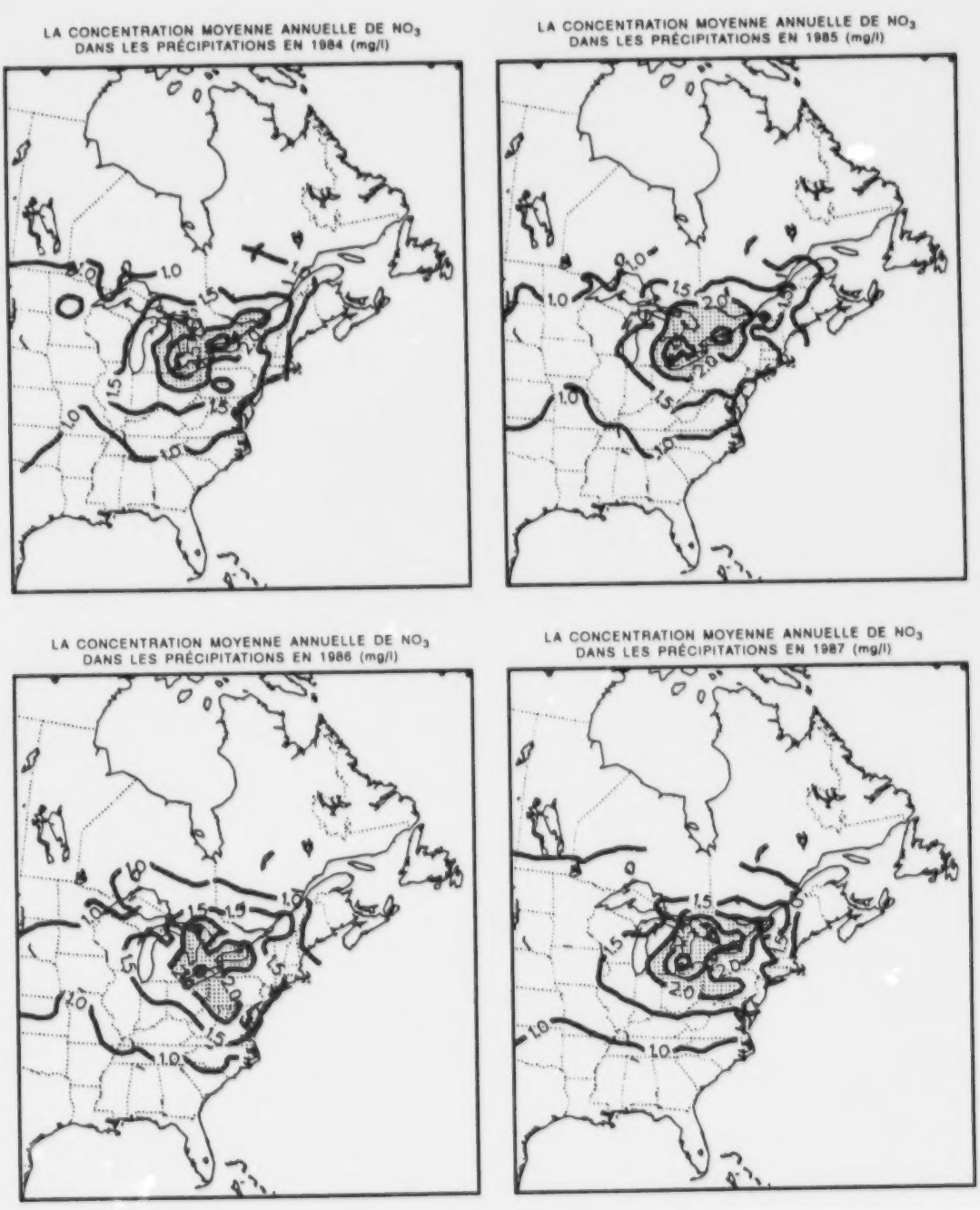


Figure 3B-6 Répartitions des précipitations annuelles - Concentrations moyennes pondérées de NO_3^- (mg/l) : 1984 à 1987.

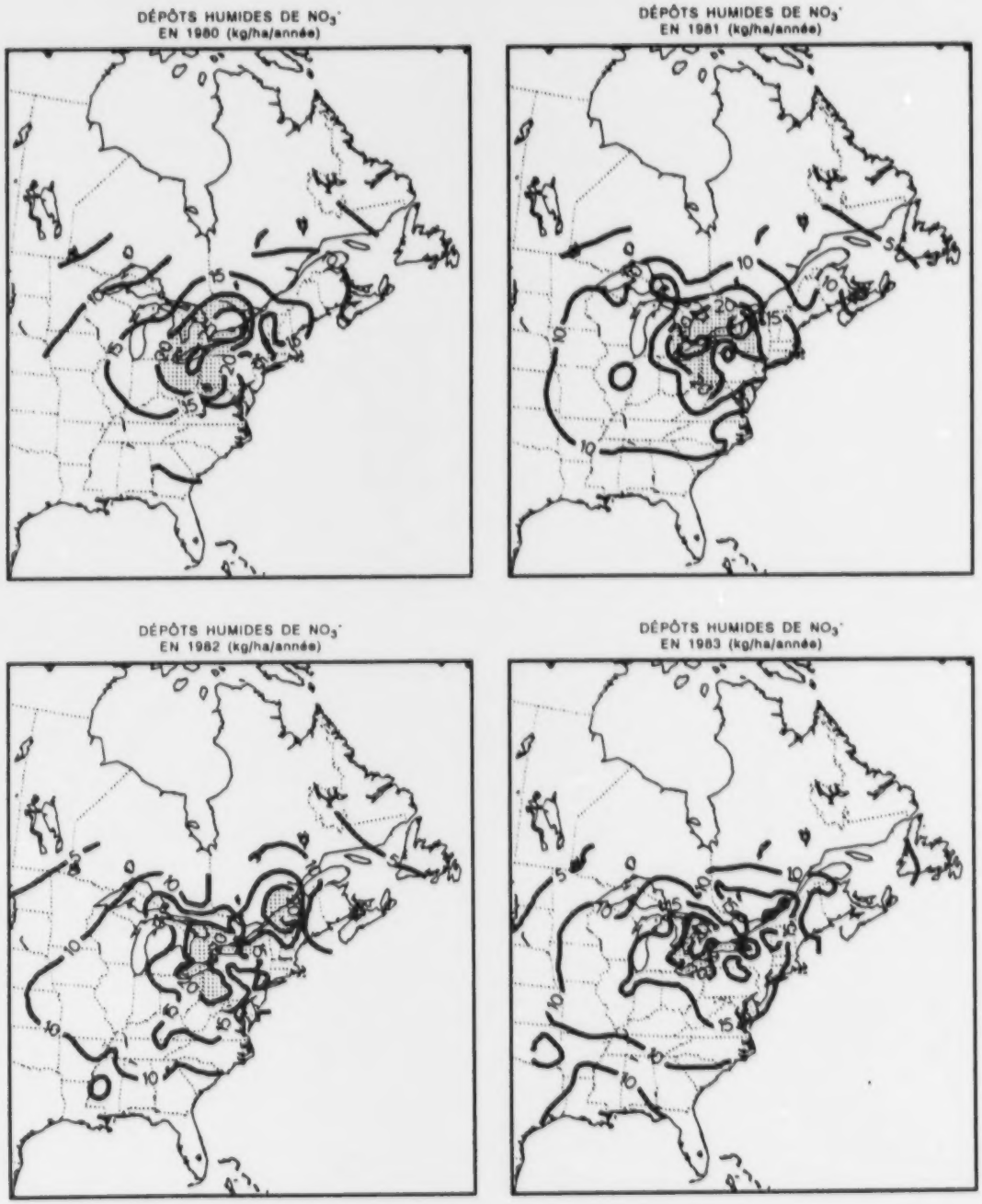


Figure 3B-7 Répartitions des dépôts humides annuels de NO_3^- (kg/ha/année) : 1980 à 1983.

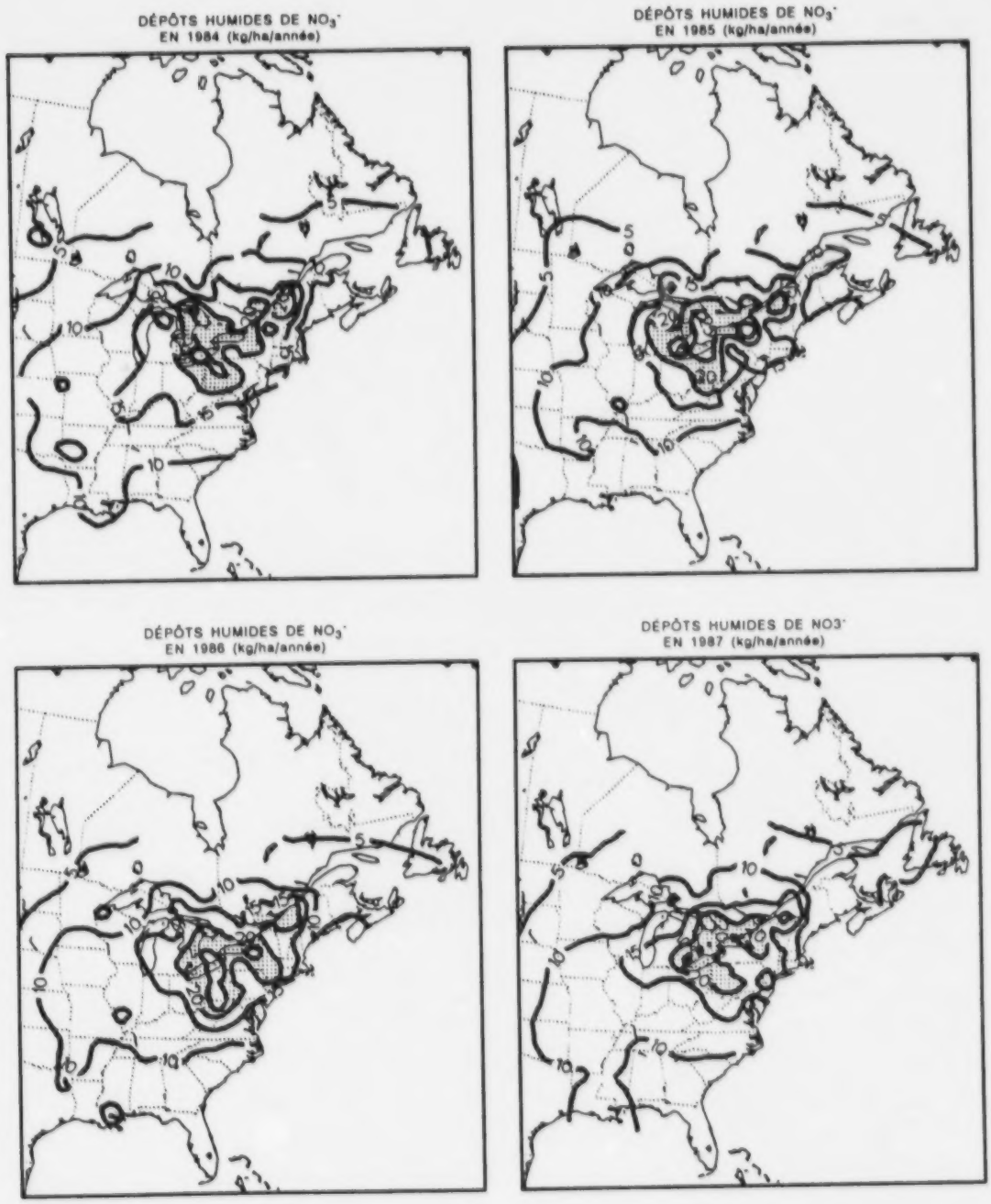


Figure 3B-8 Répartitions des dépôts humides annuels de NO_3^- (kg/ha/année) : 1984 à 1987.

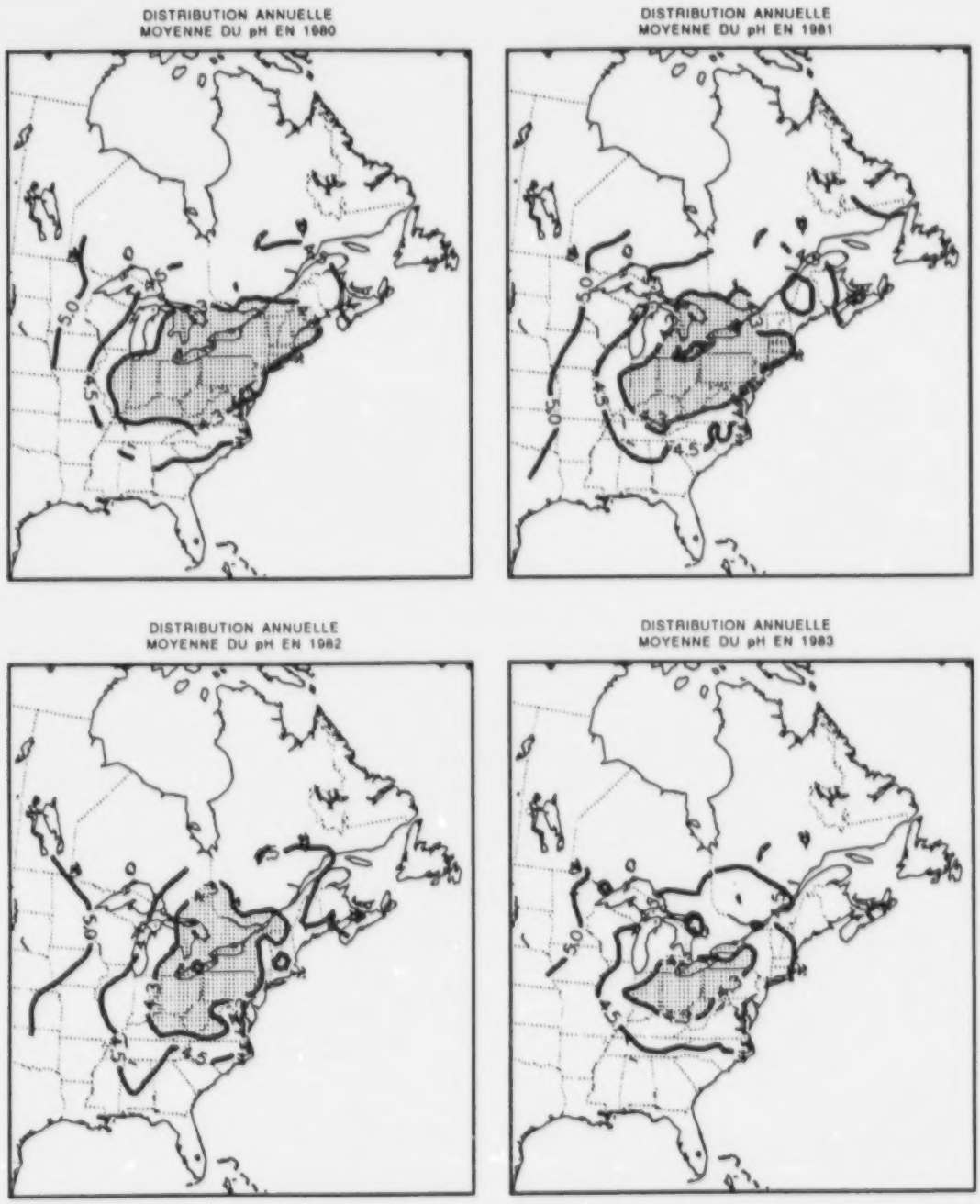


Figure 3B-9 Répartitions de la répartition annuelle moyenne du pH : 1980 à 1983.

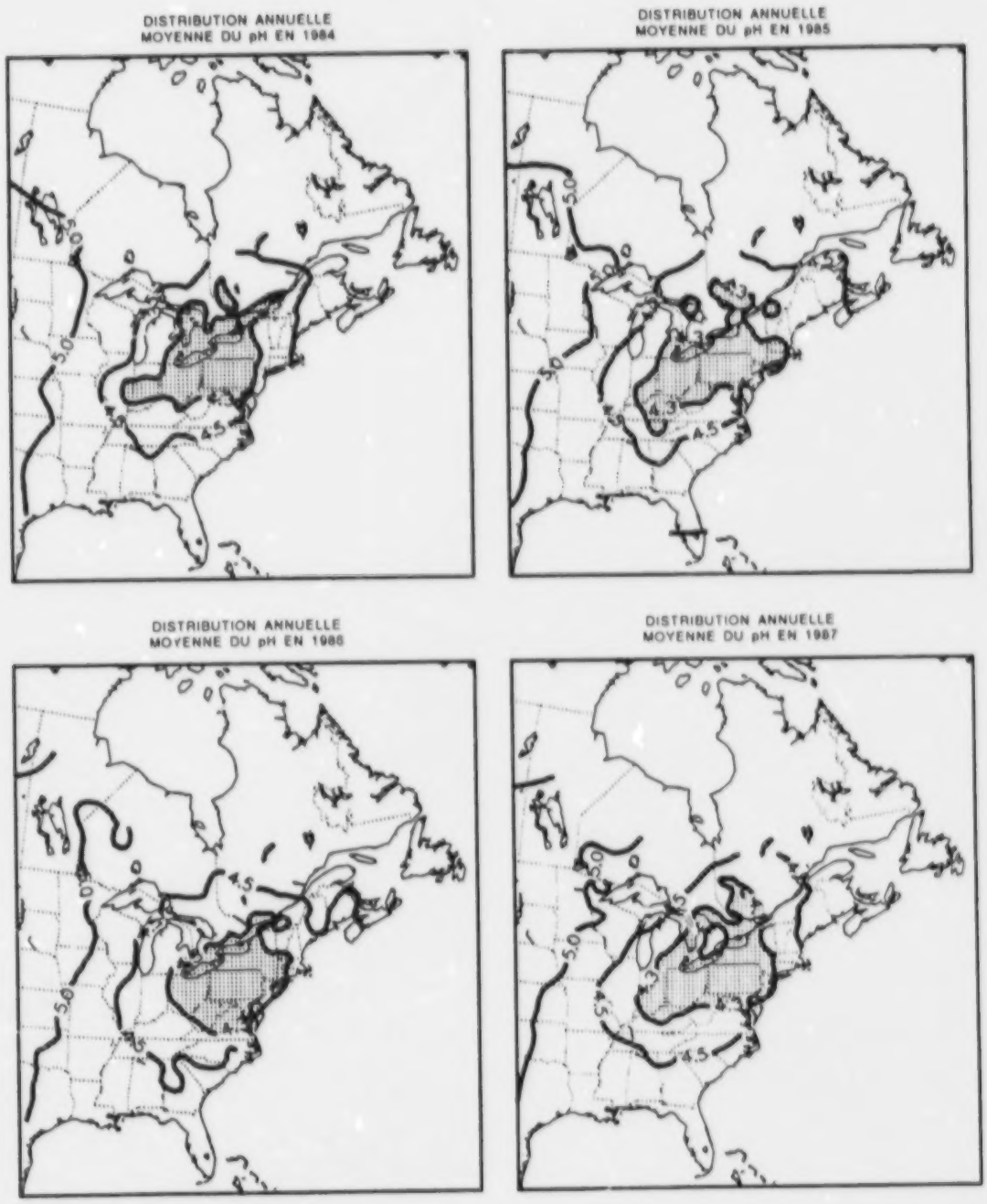


Figure 3B-10 Répartitions de la répartition annuelle moyenne du pH : 1984 à 1987.

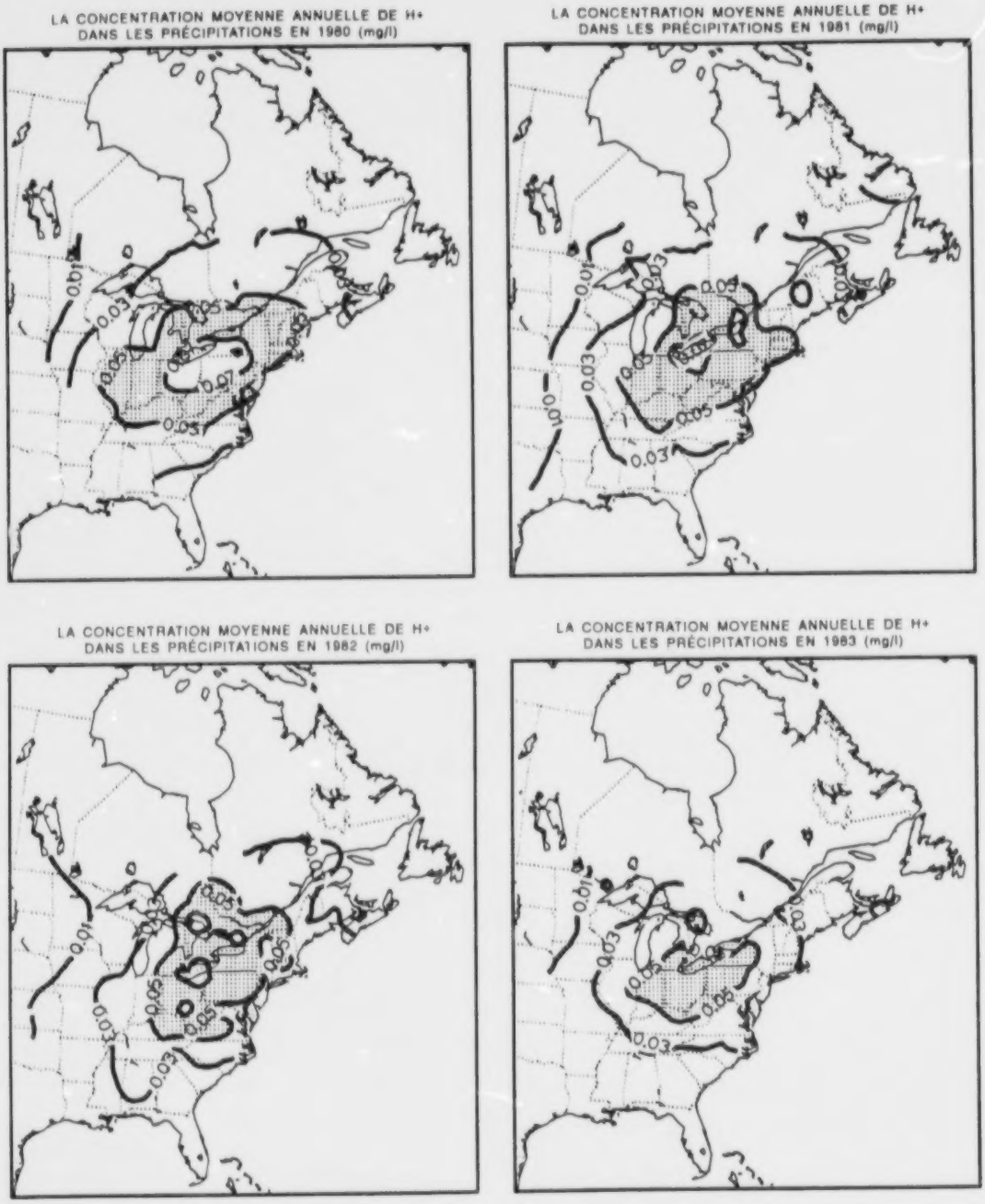


Figure 3B-11 Répartitions des précipitations annuelles - Concentrations moyennes pondérées de H^+ (mg/l) : 1980 à 1983.

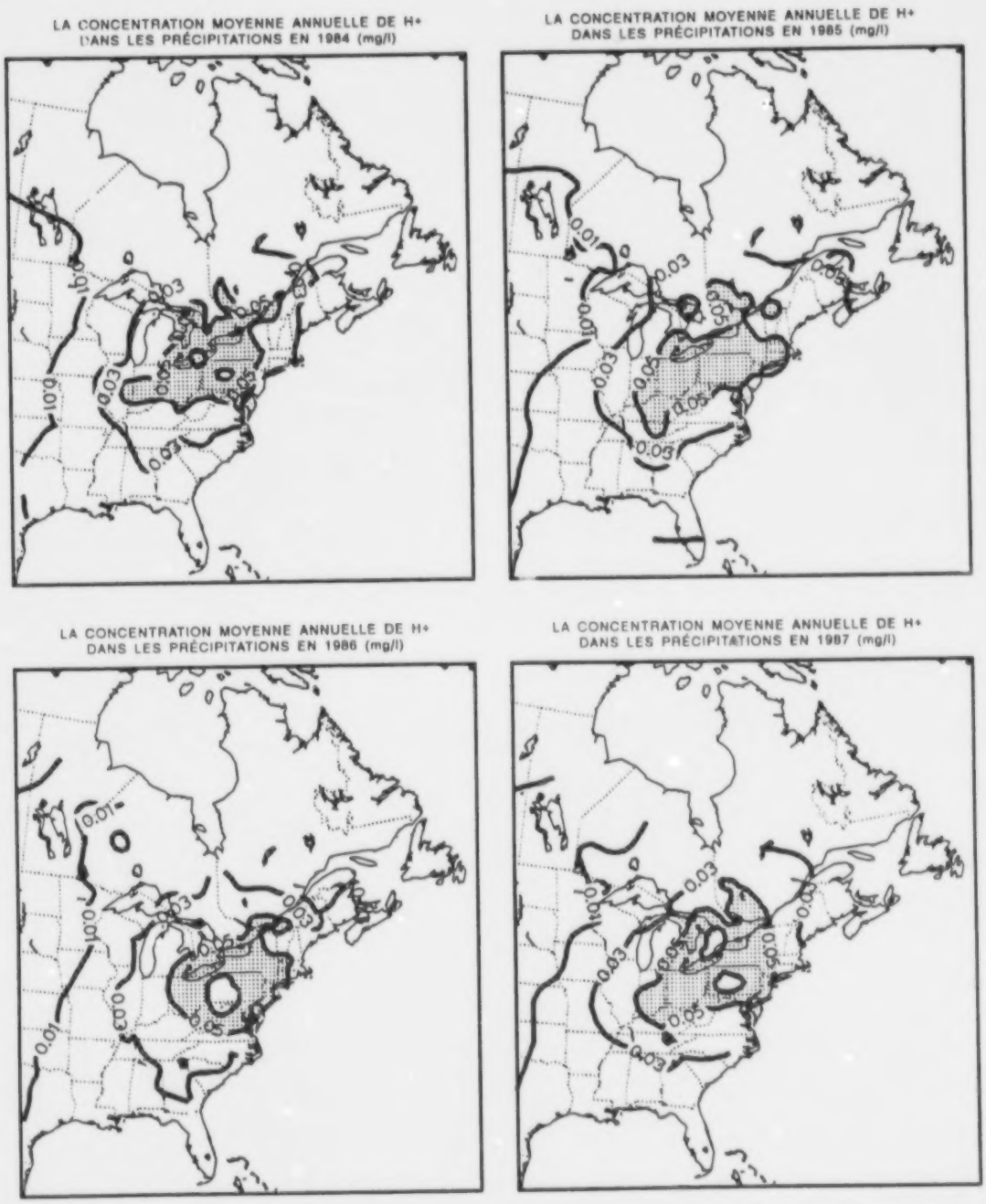


Figure 3B-12 Répartitions des précipitations annuelles - Concentrations moyennes pondérées de H^+ (mg/l) : 1984 à 1987.

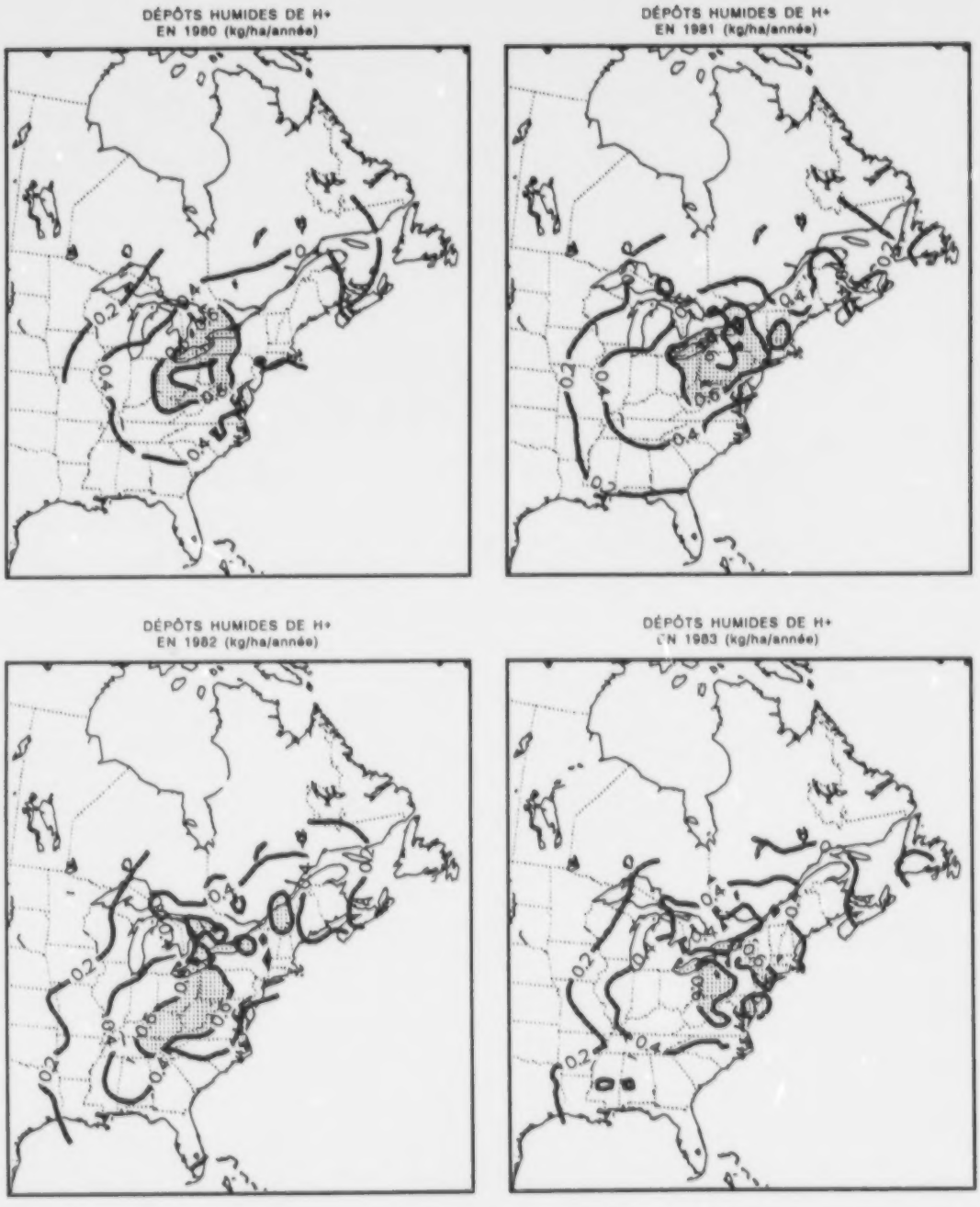


Figure 3B-13 Répartitions des dépôts humides annuels de H^+ (kg/ha/année) : 1980 à 1983.

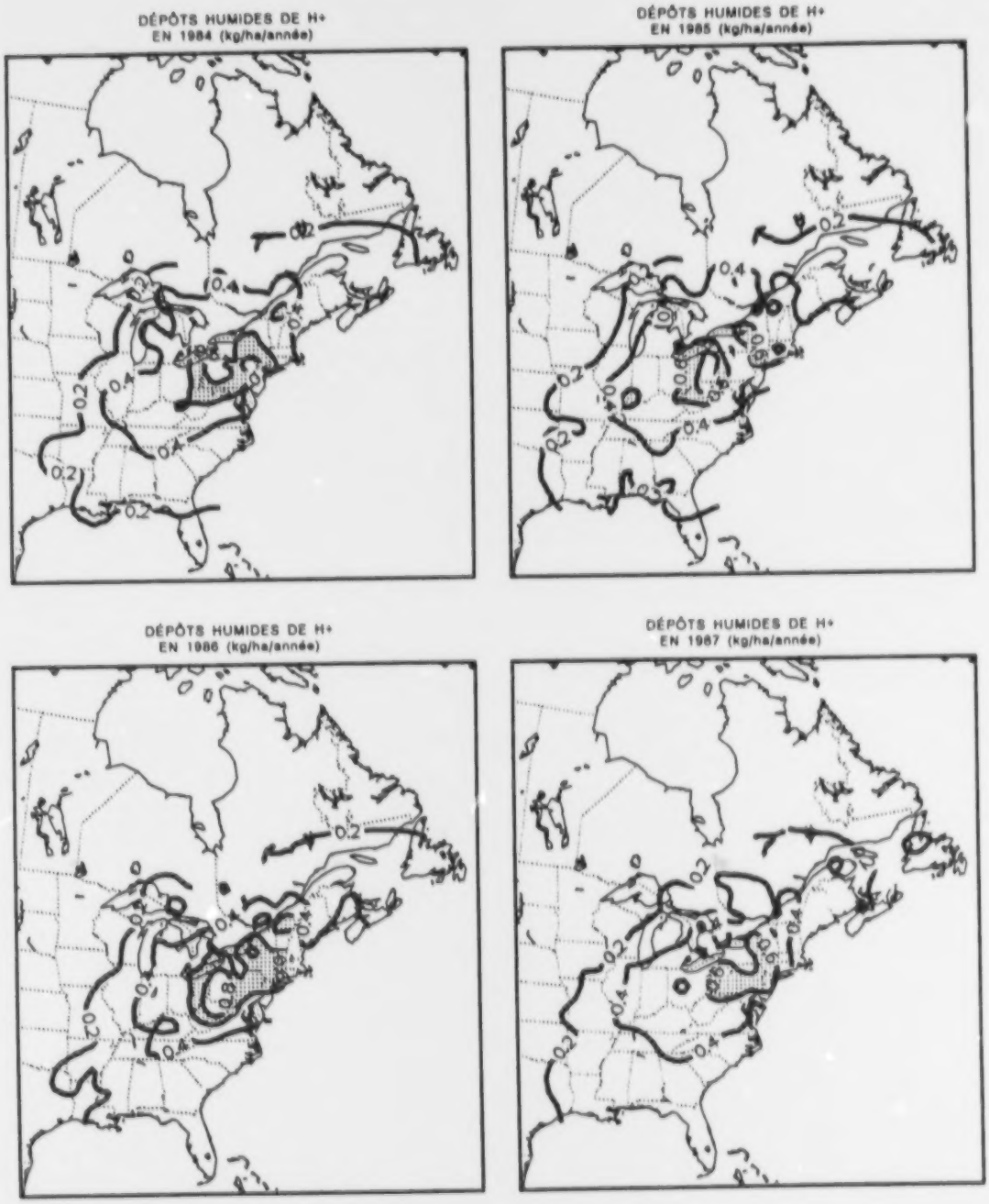


Figure 3B-14 Répartitions des dépôts humides annuels de H^+ (kg/ha/année) : 1984 à 1987.

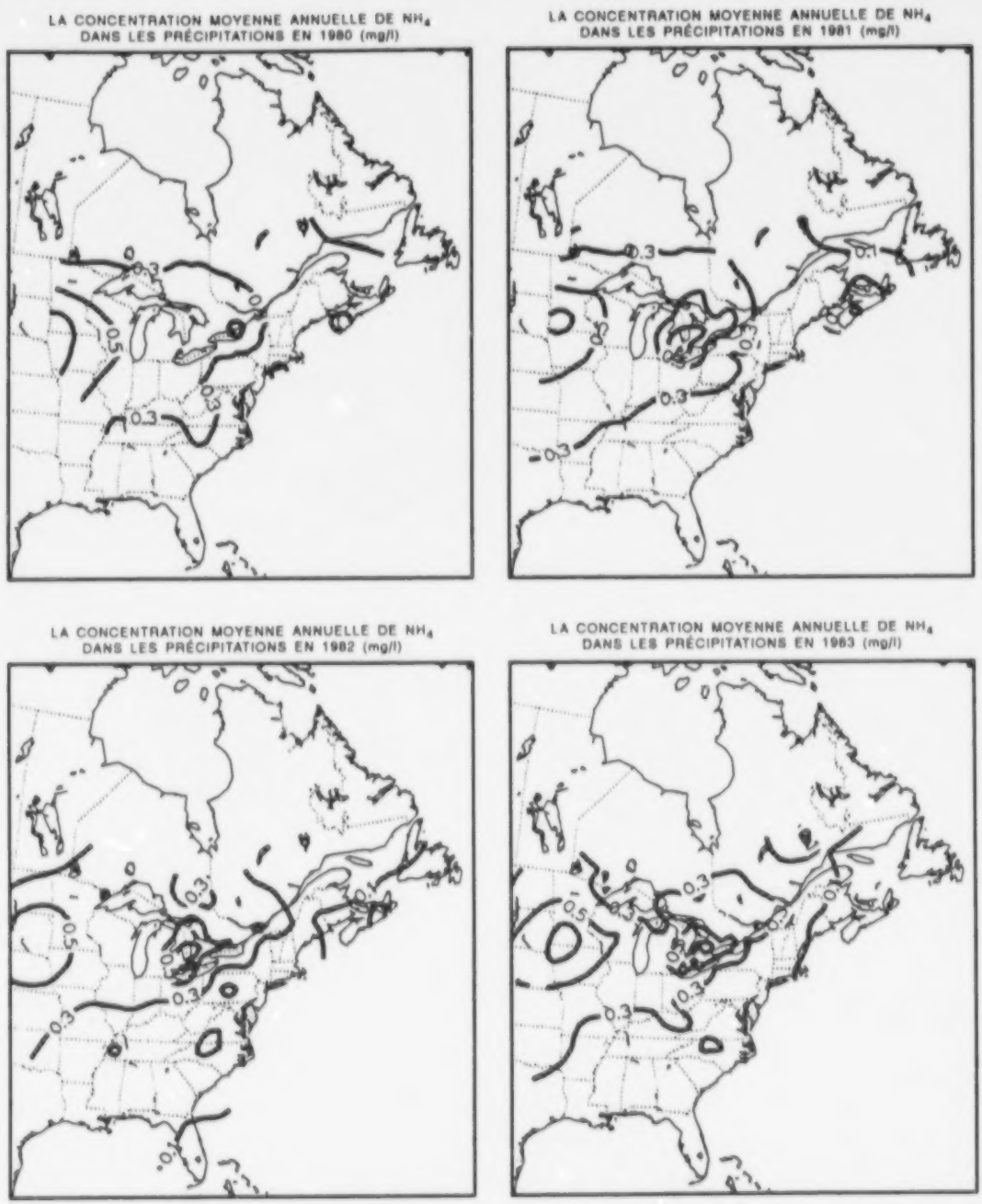


Figure 3B-15 Répartitions des précipitations annuelles - Concentrations moyennes pondérées de NH_4^+ (mg/l) : 1980 à 1983.

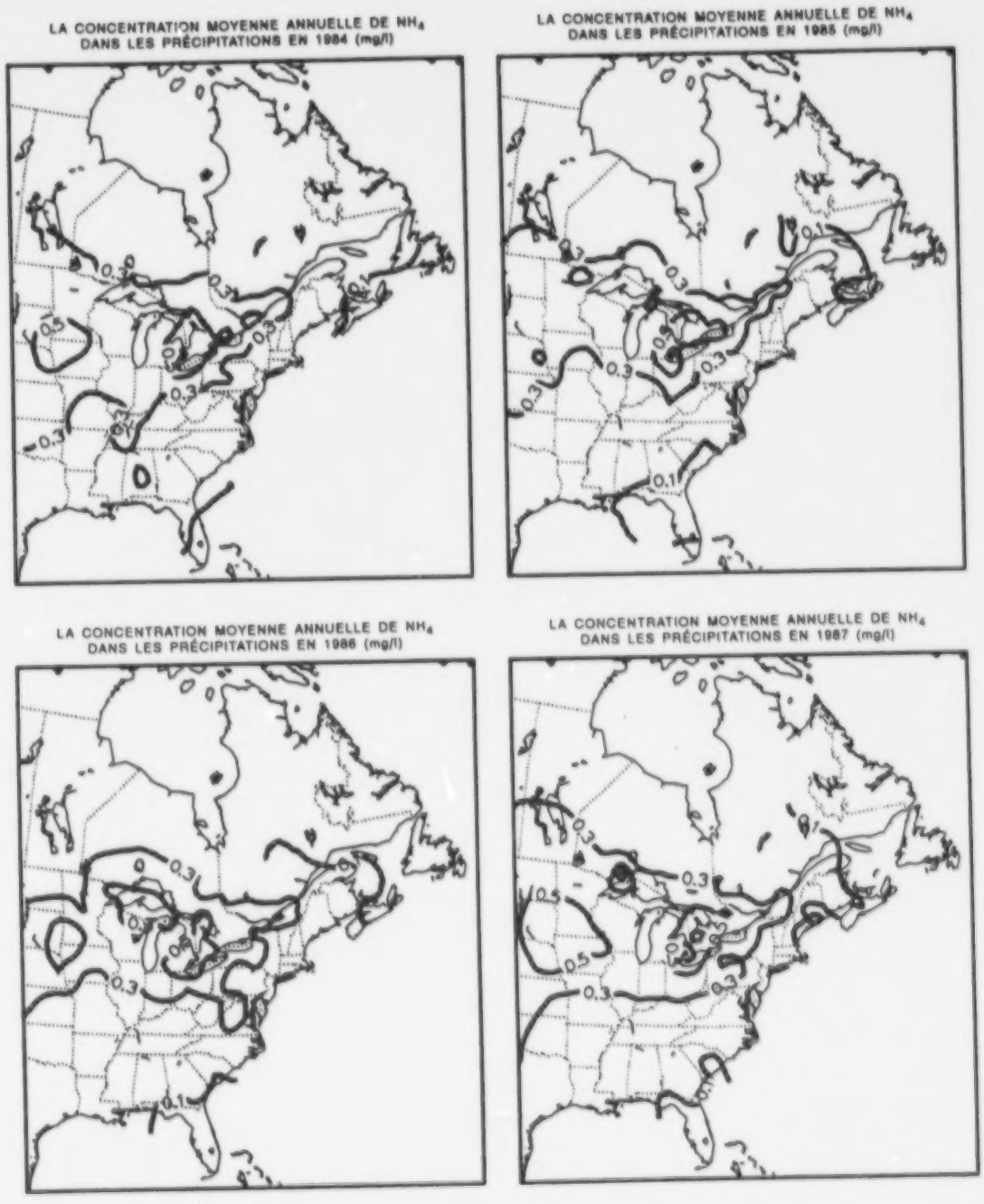


Figure 3B-16 Répartitions des précipitations annuelles - Concentrations moyennes pondérées de NH_4^+ (mg/l) : 1984 à 1987.

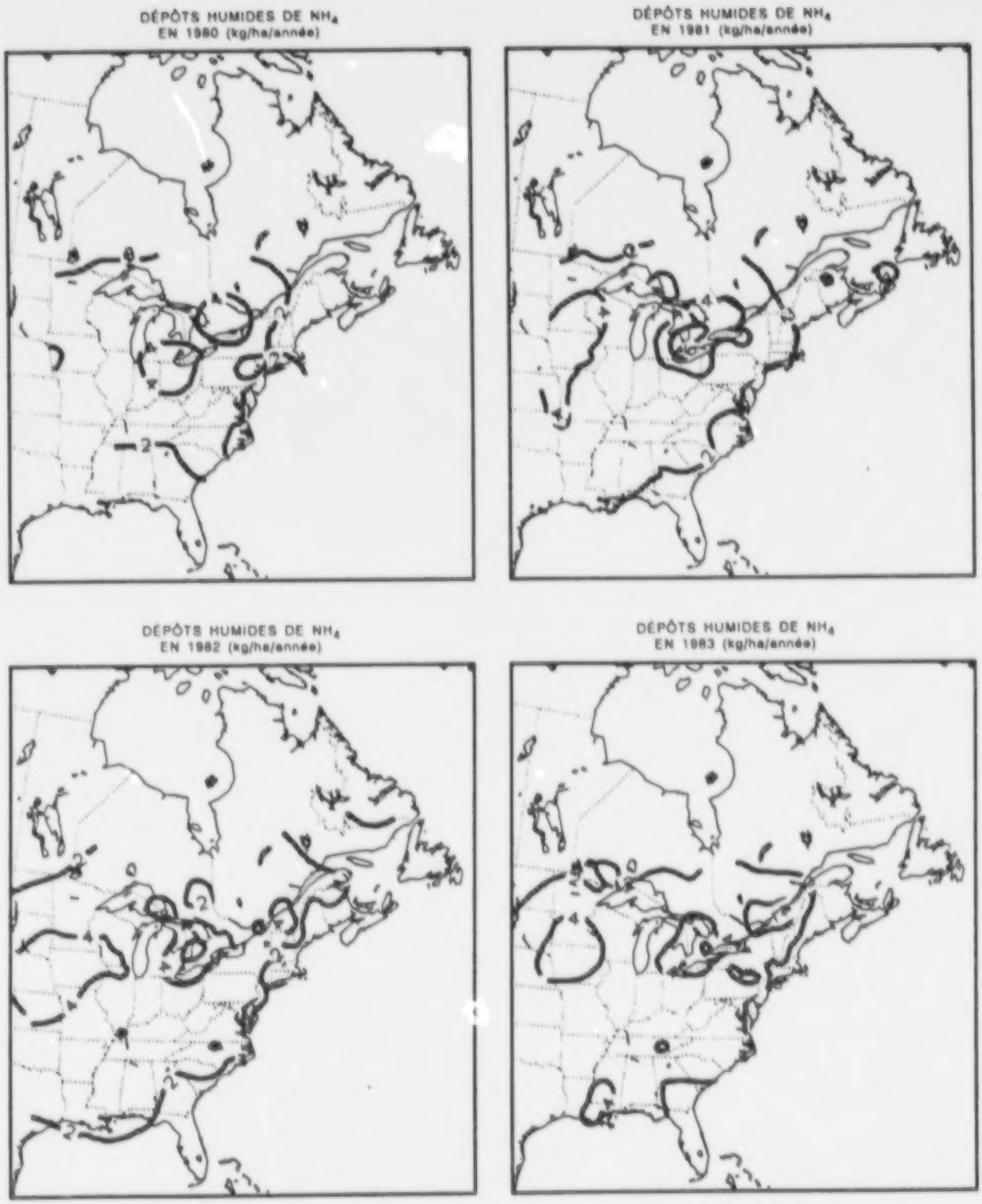


Figure 3B-17 Répartitions des dépôts humides annuels de NH_4^+ (kg/ha/année) : 1980 à 1983.

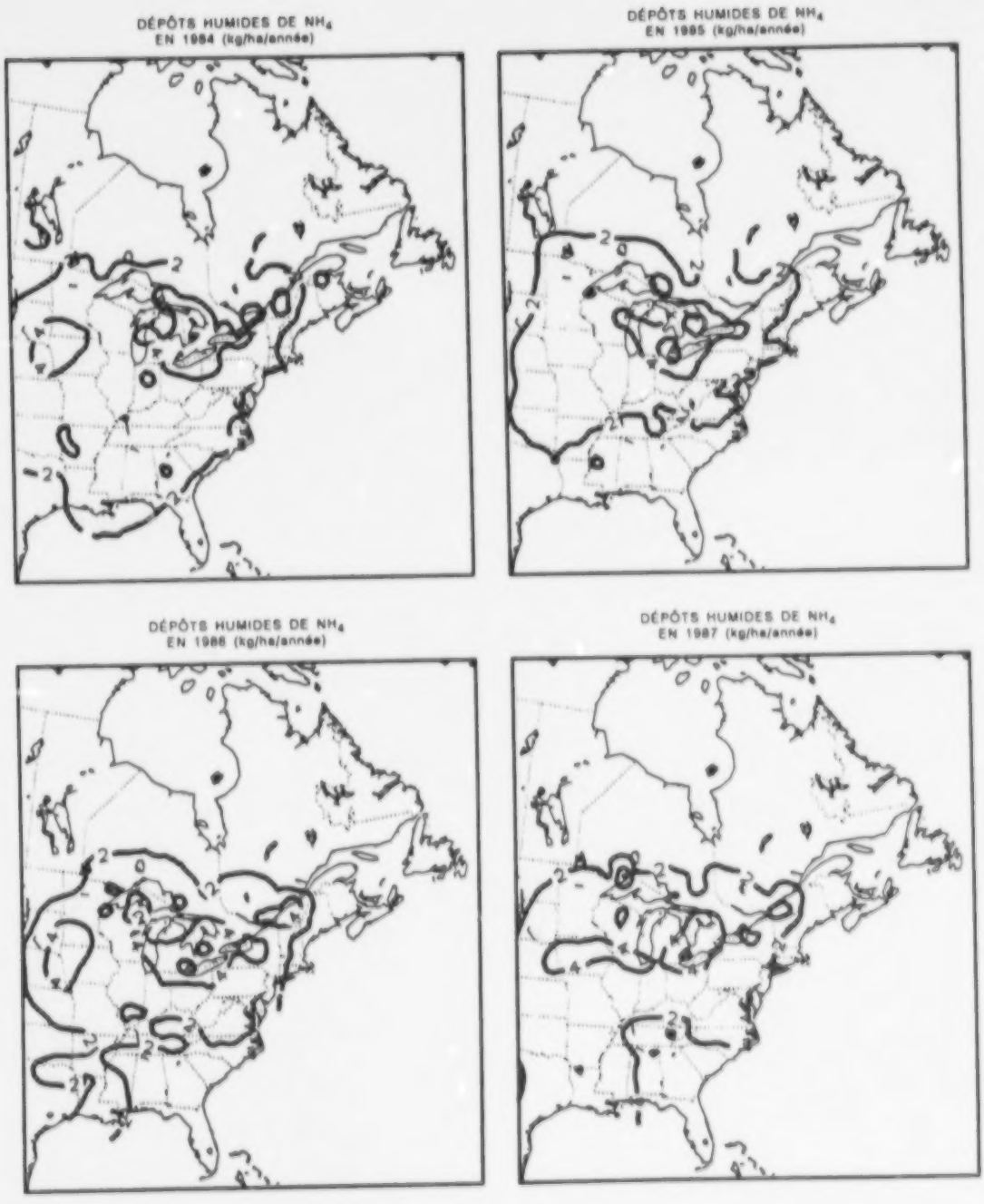


Figure 3B-18 Répartitions des dépôts humides annuels de NH_4^+ (kg/ha/année) : 1984 à 1987.

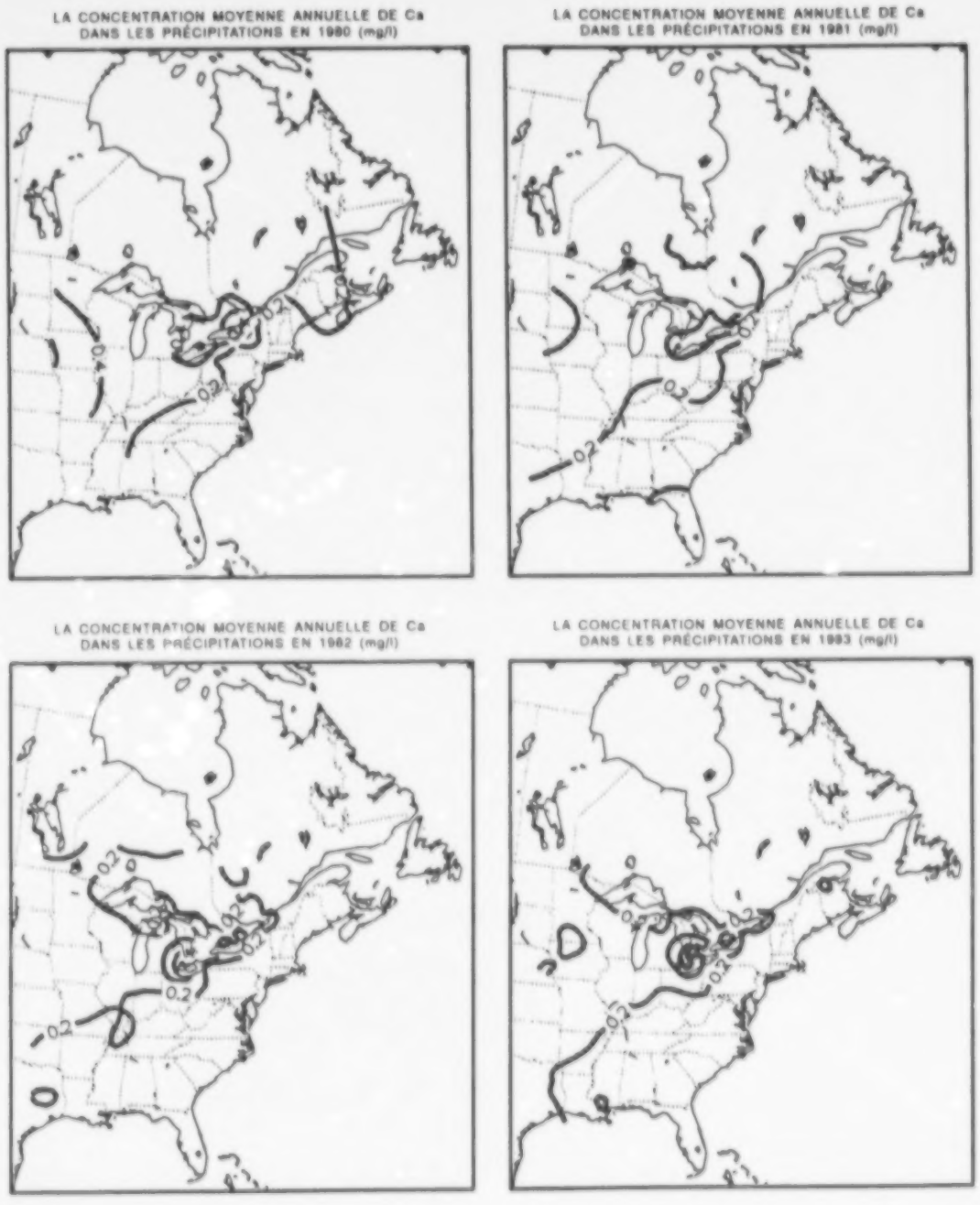


Figure 3B-19 Répartitions des précipitations annuelles - Concentrations moyennes pondérées de Ca^{+2} (mg/l) : 1980 à 1983.

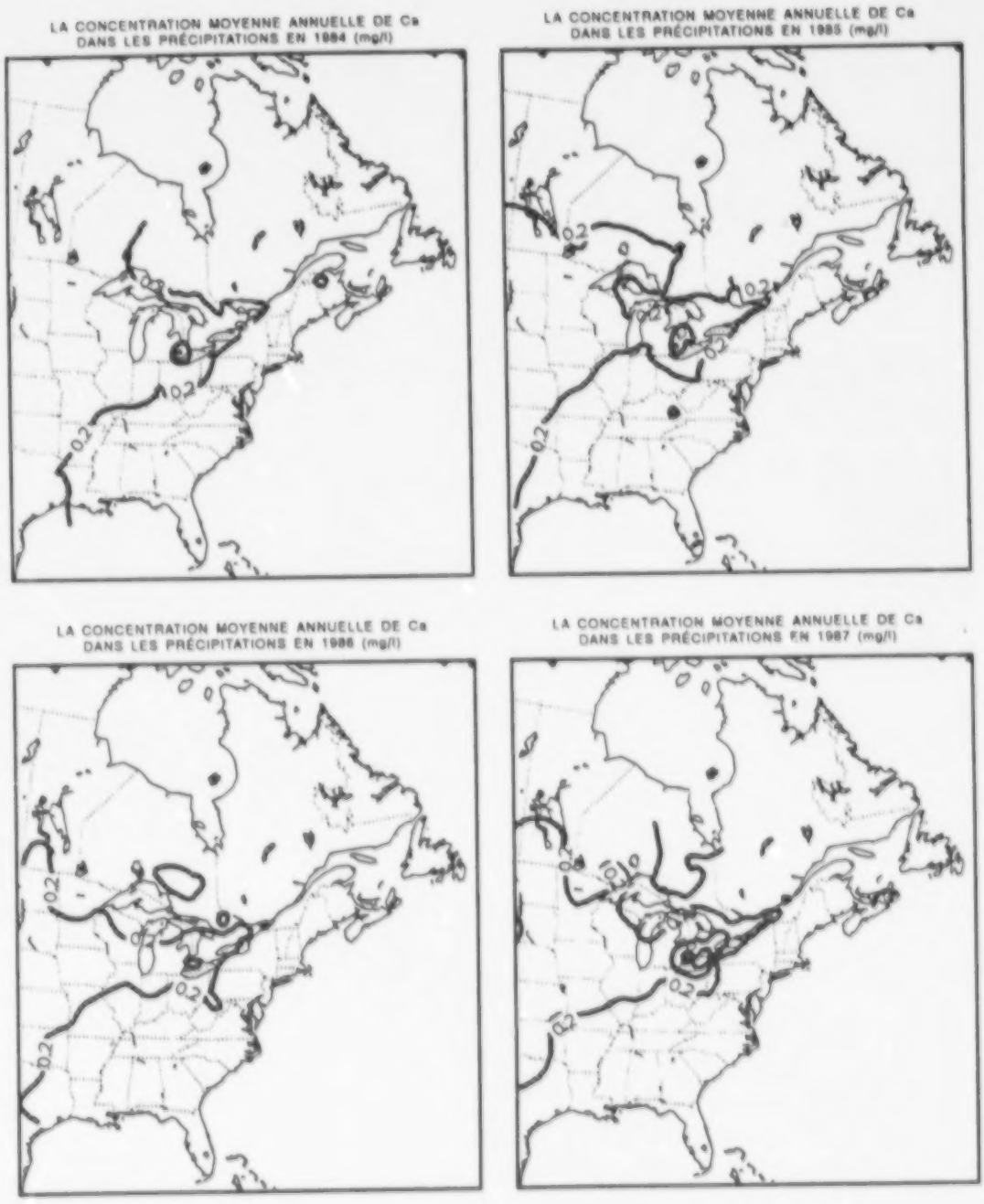


Figure 3B-20 Répartitions des précipitations annuelles - Concentrations moyennes pondérées de Ca^{+2} (mg/l) : 1984 à 1987.

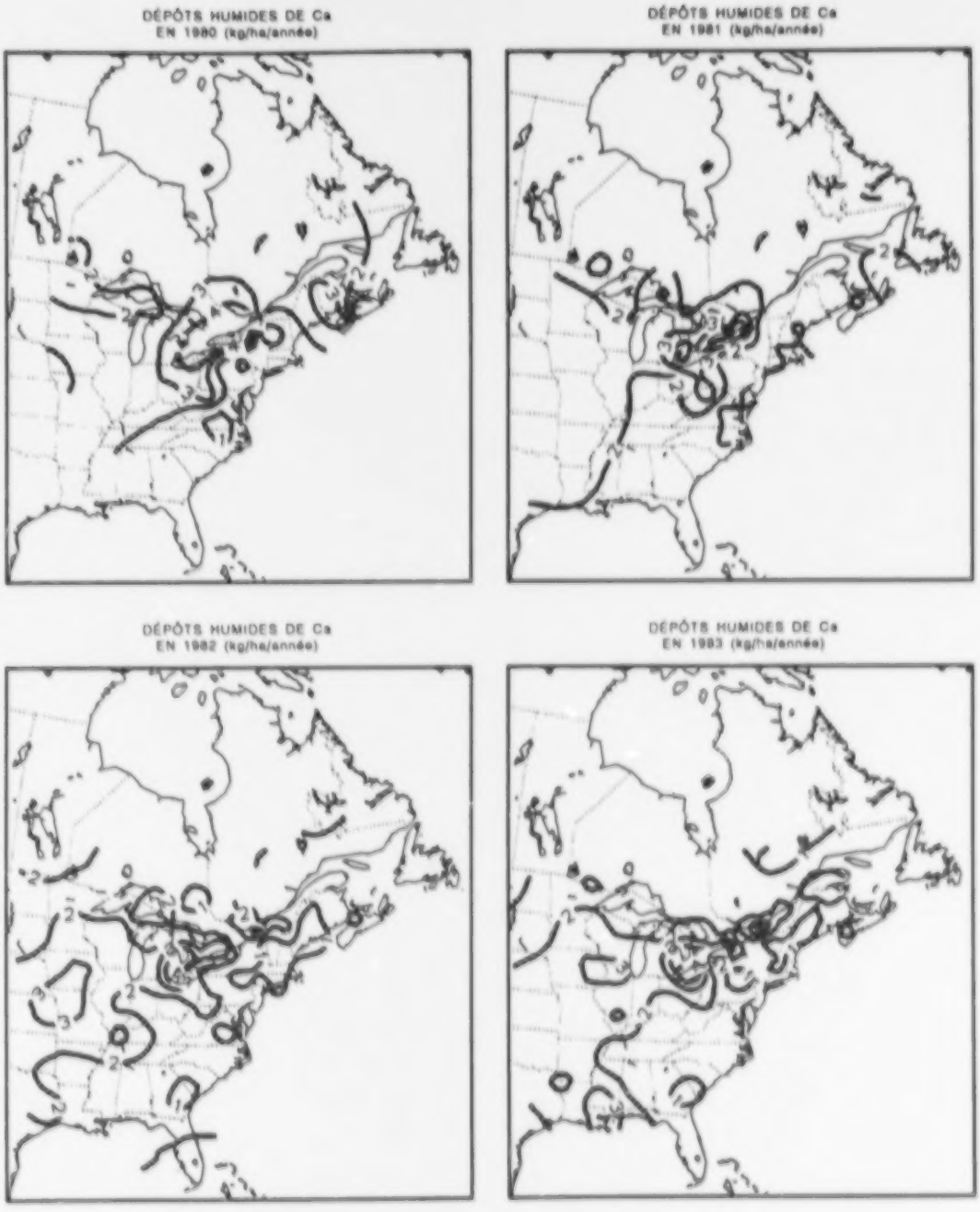


Figure 3B-21 Répartitions des dépôts humides annuels de Ca^{+2} (kg/ha/année) : 1980 à 1983.

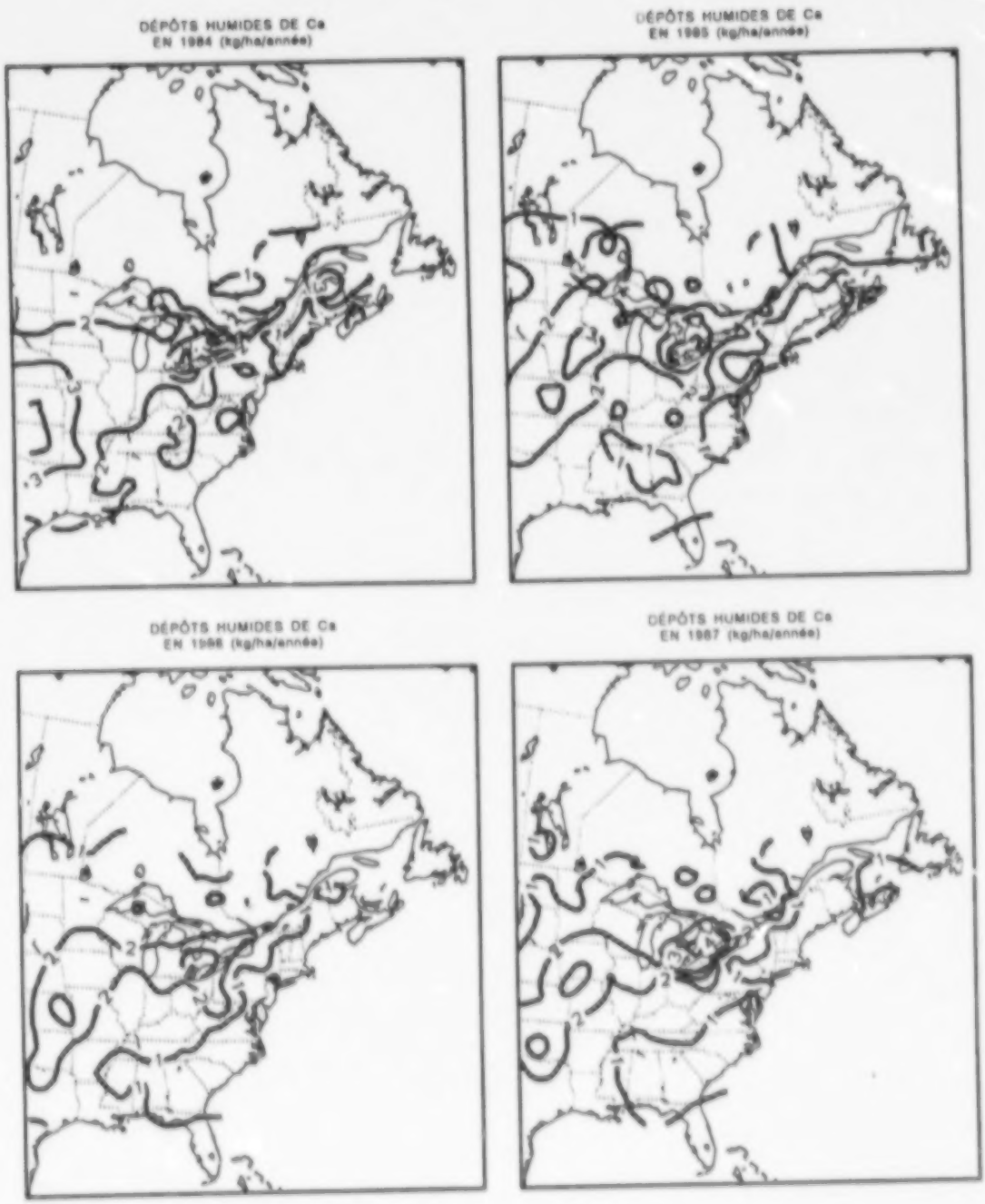


Figure 3B-22 Répartitions des dépôts humides annuels de Ca^{+2} (kg/ha/année) : 1984 à 1987.

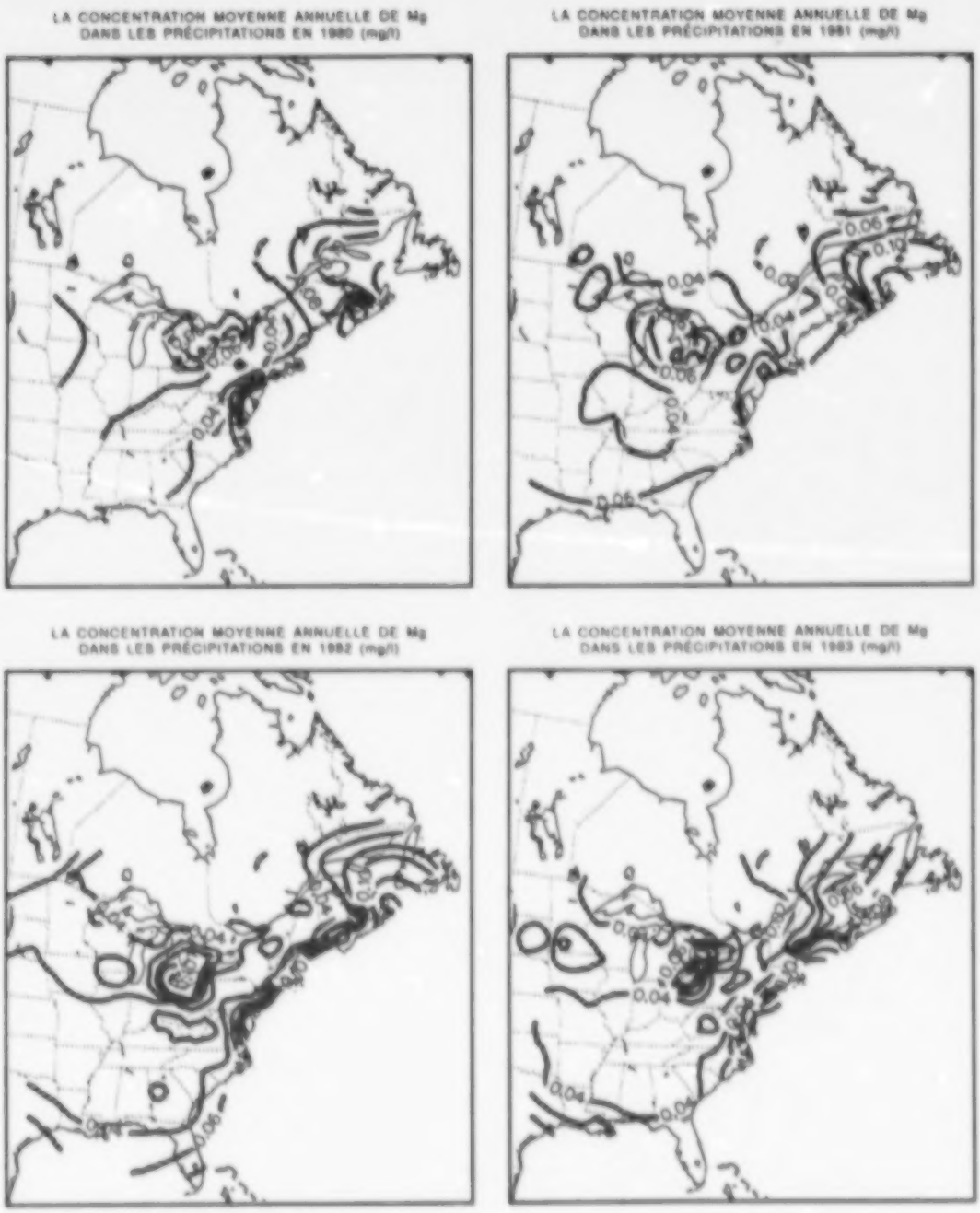


Figure 3B-23 Répartitions des précipitations annuelles - Concentrations moyennes pondérées de Mg^{+2} (mg/l) : 1980 à 1983.

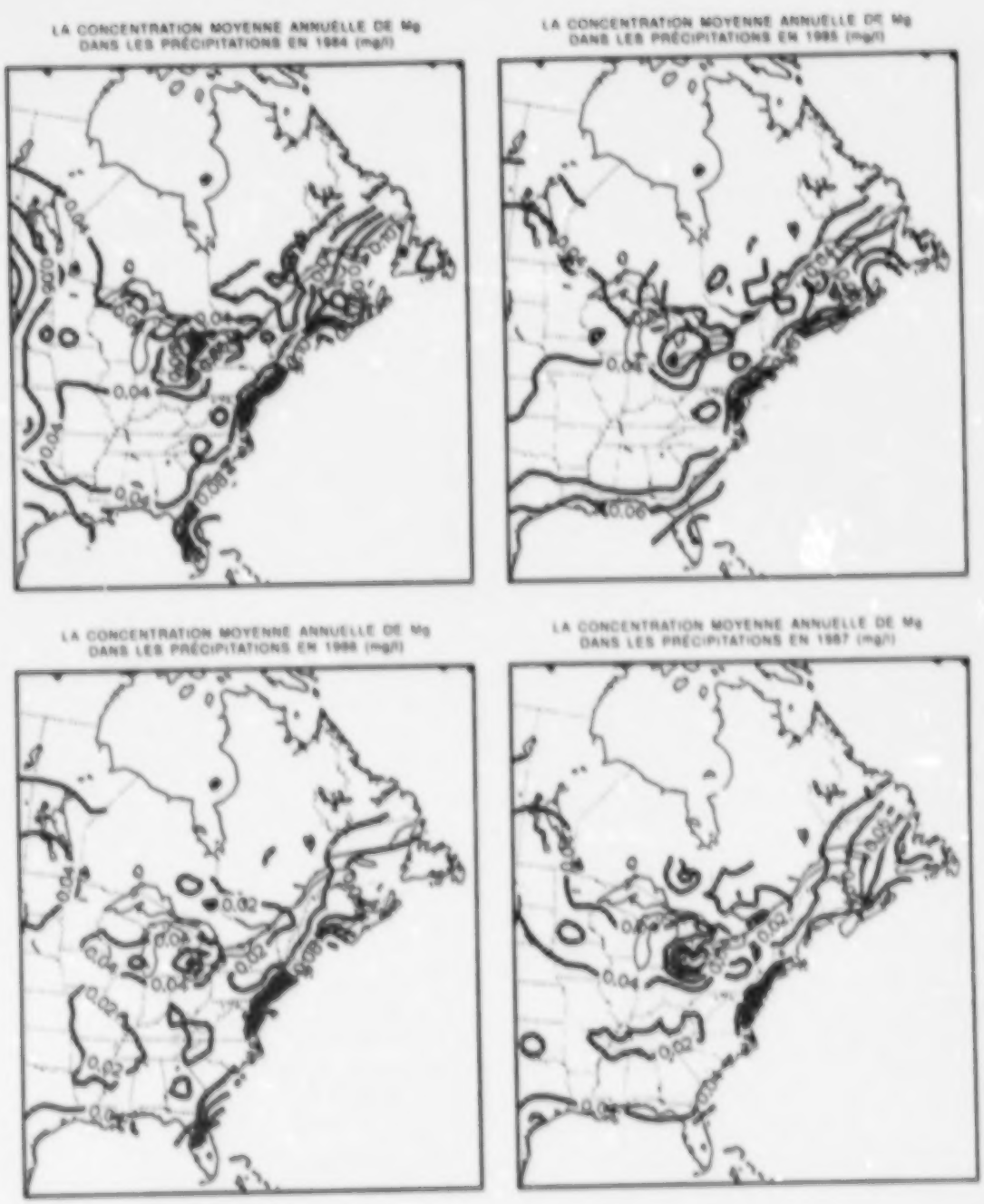


Figure 3B-24 Répartitions des précipitations annuelles - Concentrations moyennes pondérées de Mg^{+2} (mg/l) : 1984 à 1987.

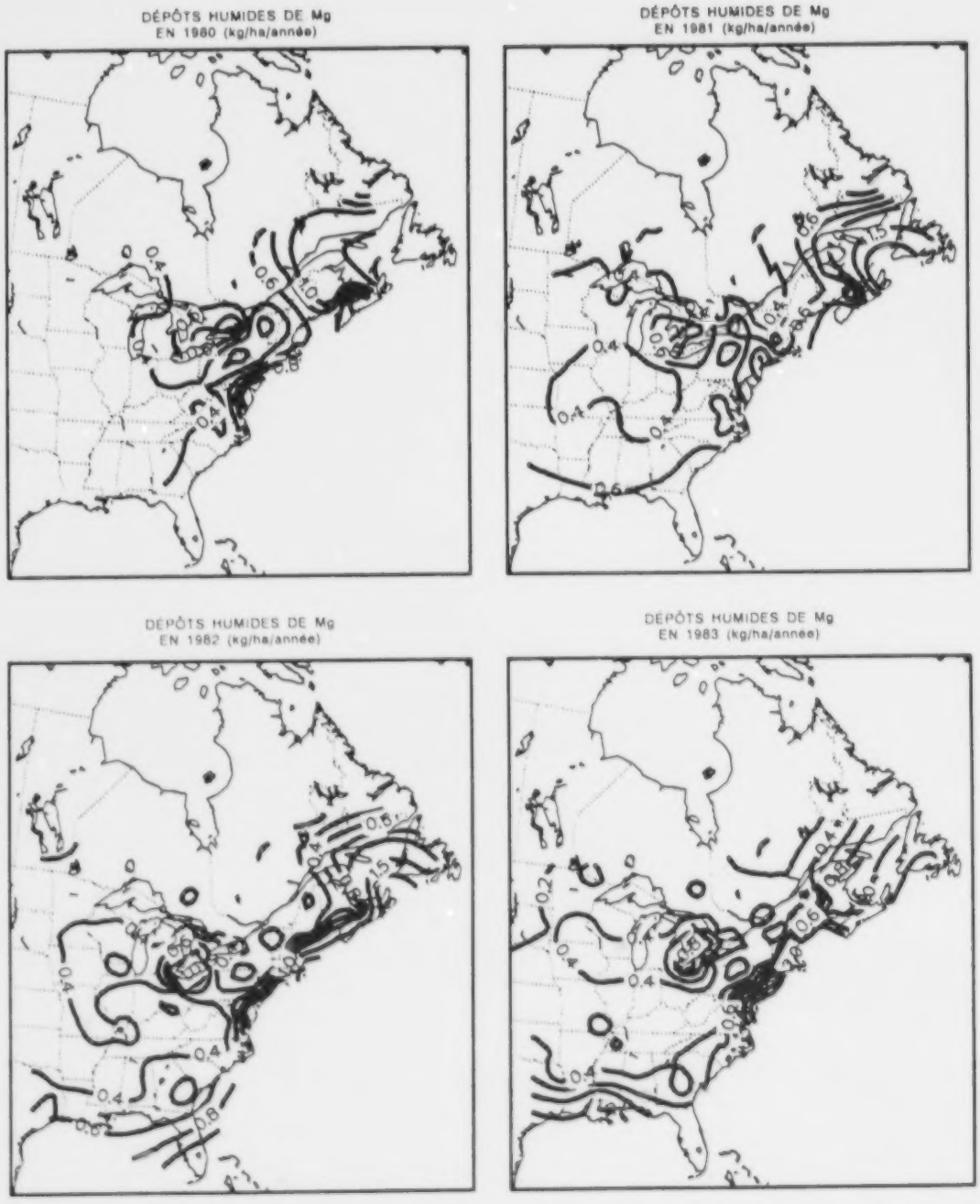


Figure 3B-25 Répartitions des dépôts humides annuels de Mg^{+2} (kg/ha/année) : 1980 à 1983.

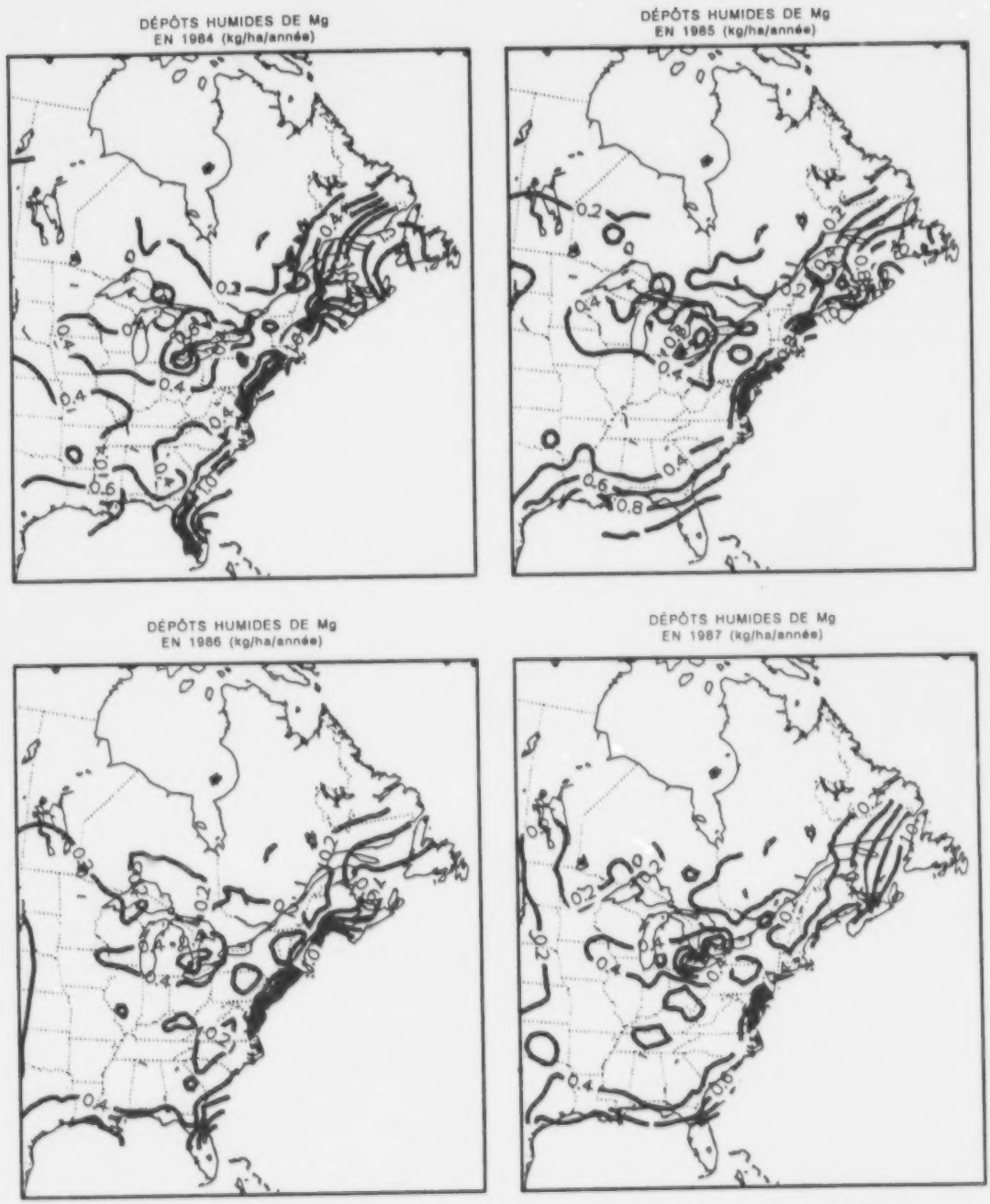


Figure 3B-26 Répartitions des dépôts humides annuels de Mg^{+2} (kg/ha/année) : 1984 à 1987.

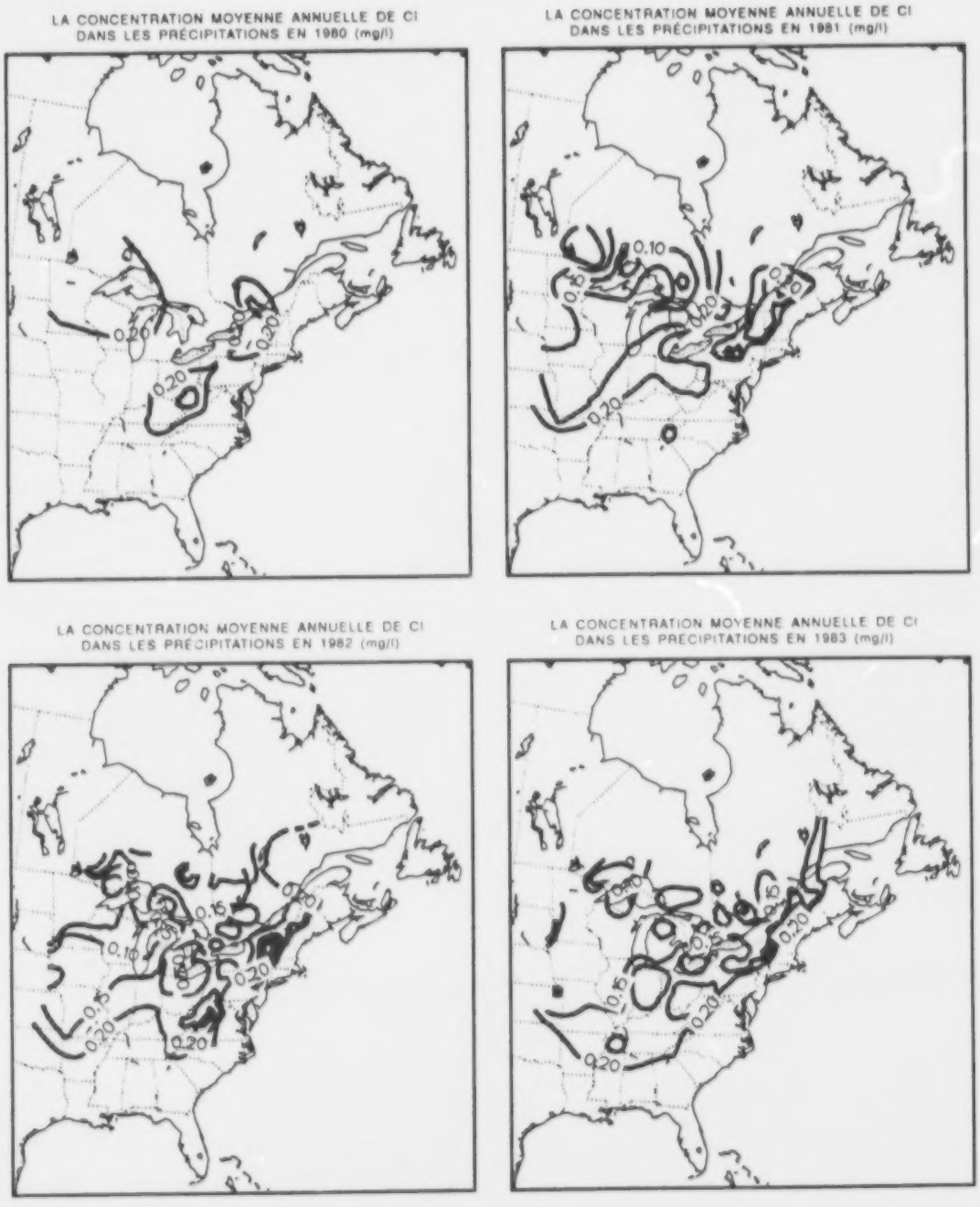


Figure 3B-27 Répartitions des précipitations annuelles - Concentrations moyennes pondérées de Cl^- (mg/l) : 1980 à 1983.

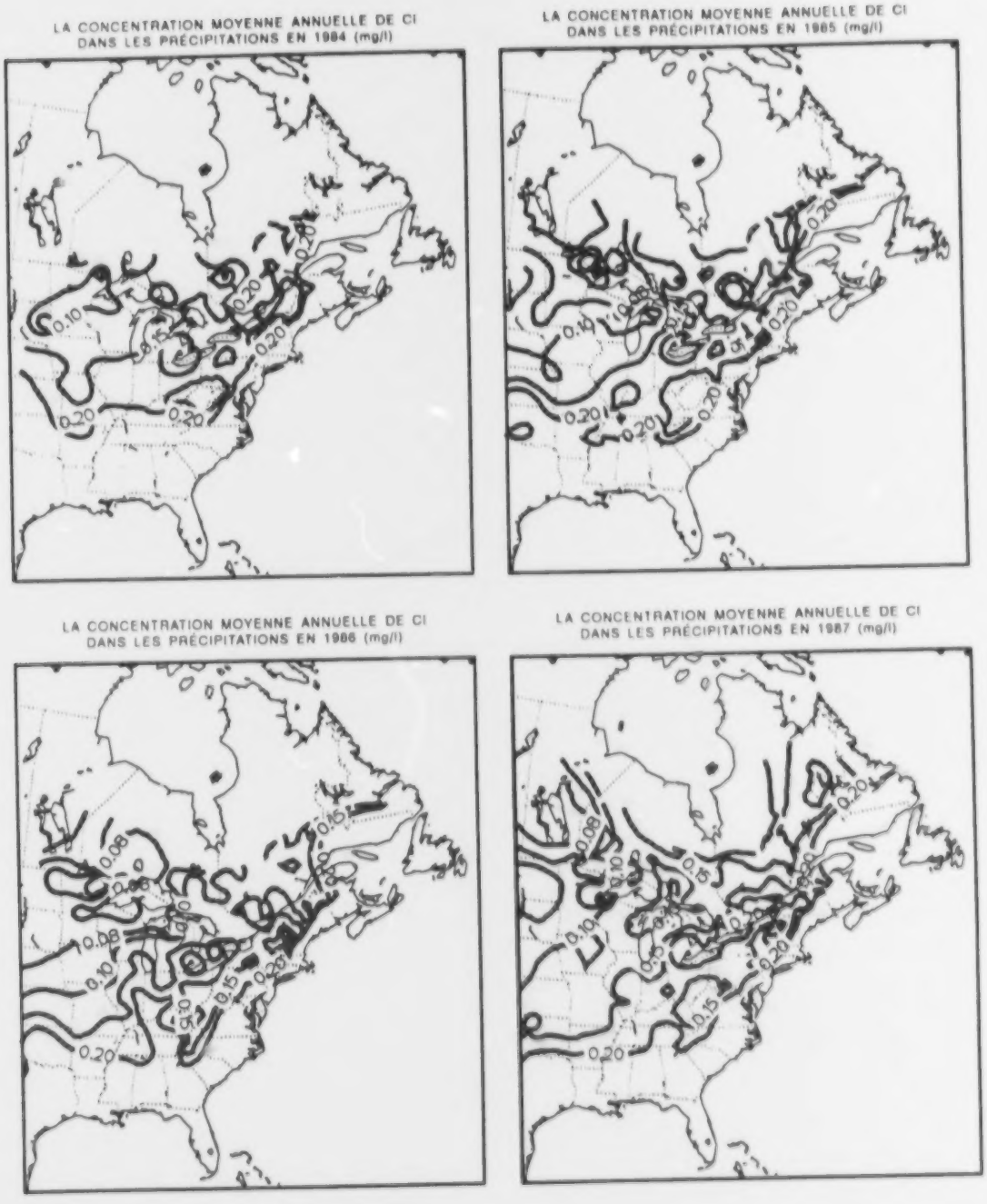


Figure 3B-28 Répartitions des précipitations annuelles - Concentrations moyennes pondérées de Cl^- (mg/l) : 1984 à 1987.

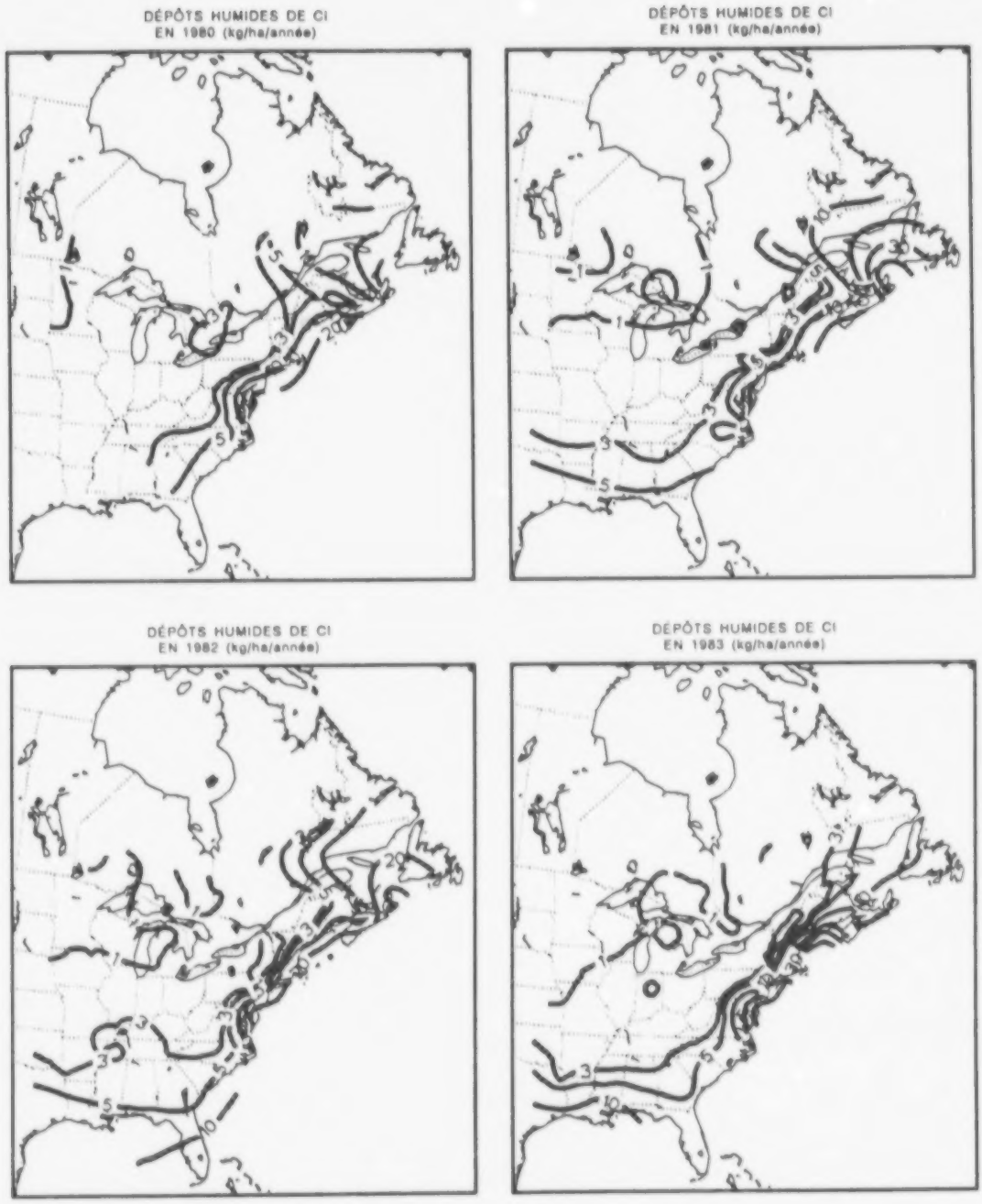


Figure 3B-29 Répartitions des dépôts humides annuels de Cl^- (kg/ha/année) : 1980 à 1983.

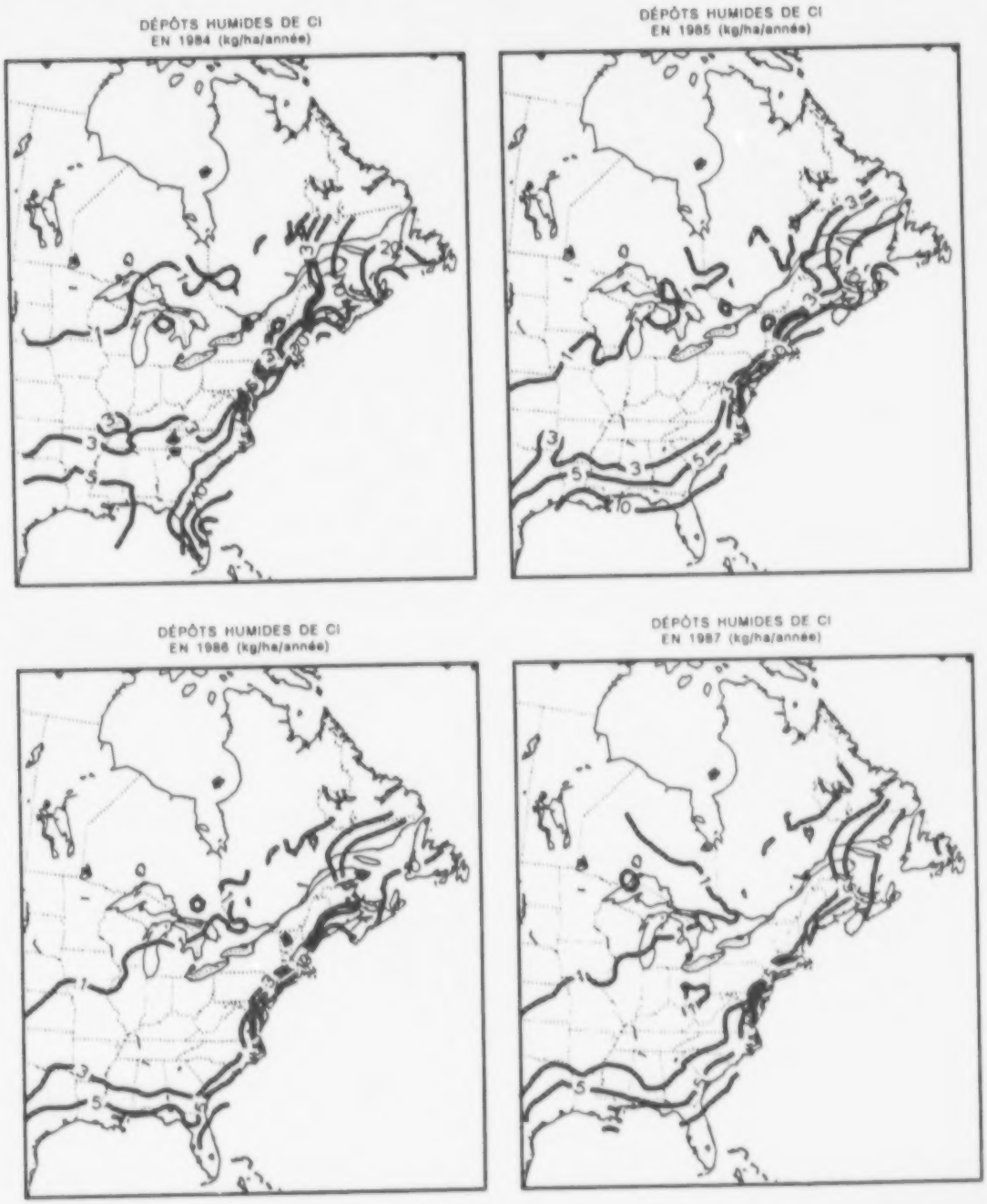


Figure 3B-30 Répartitions des dépôts humides annuels de Cl^- (kg/ha/année) : 1984 à 1987.

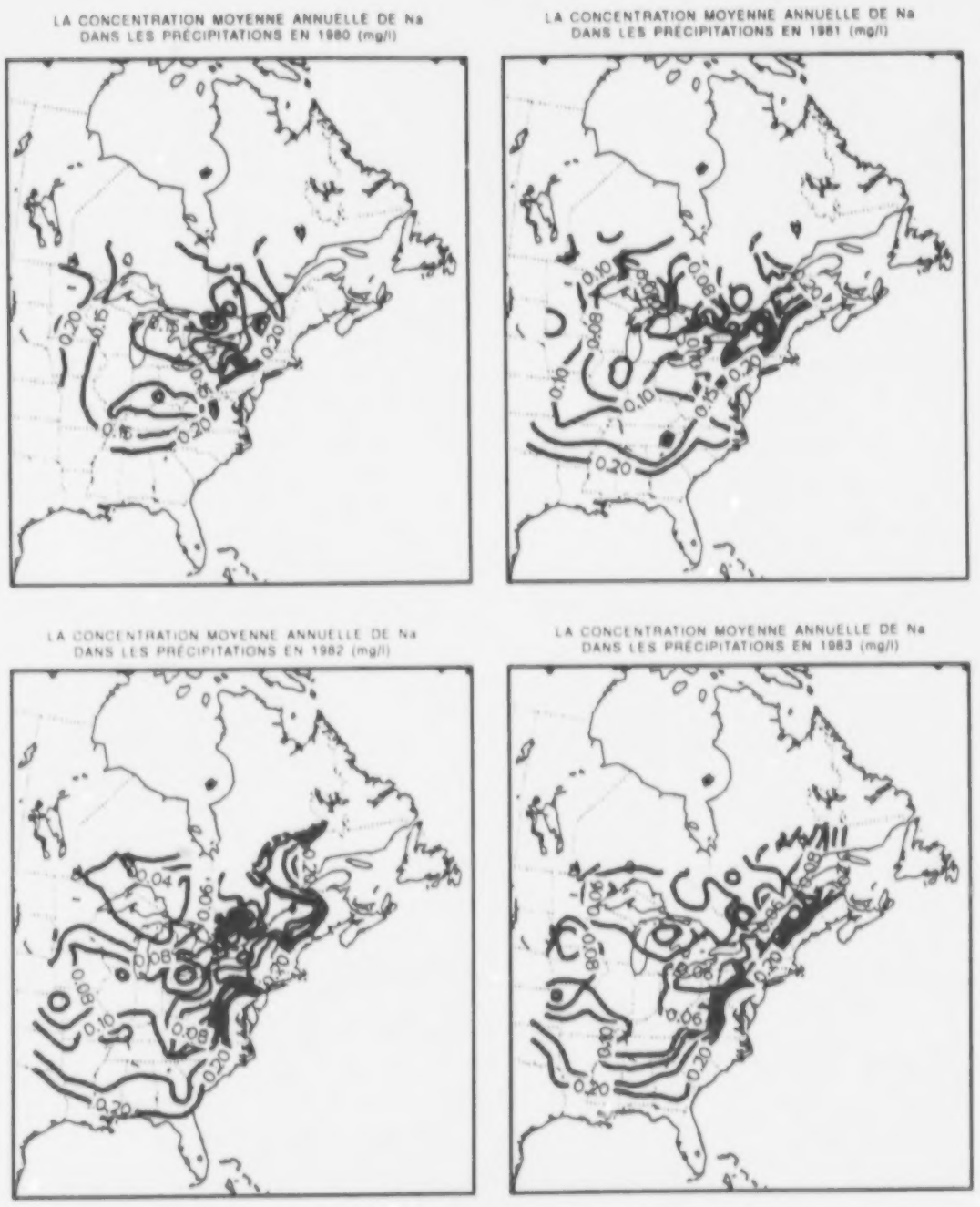


Figure 3B-31 Répartitions des précipitations annuelles - Concentrations moyennes pondérées de Na^+ (mg/l) : 1980 à 1983.

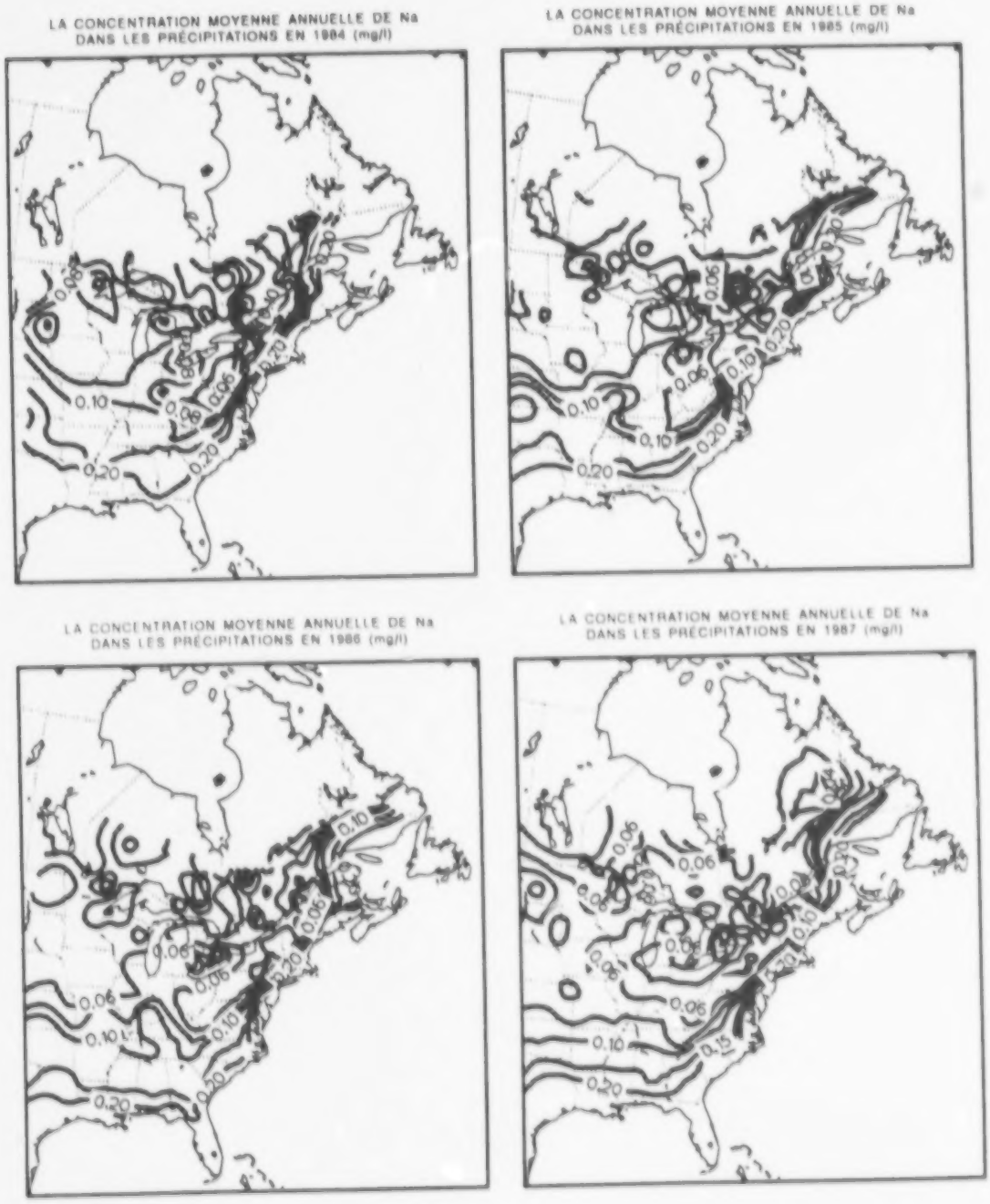


Figure 3B-32 Répartitions des précipitations annuelles - Concentrations moyennes pondérées de Na^+ (mg/l) : 1983 à 1987.

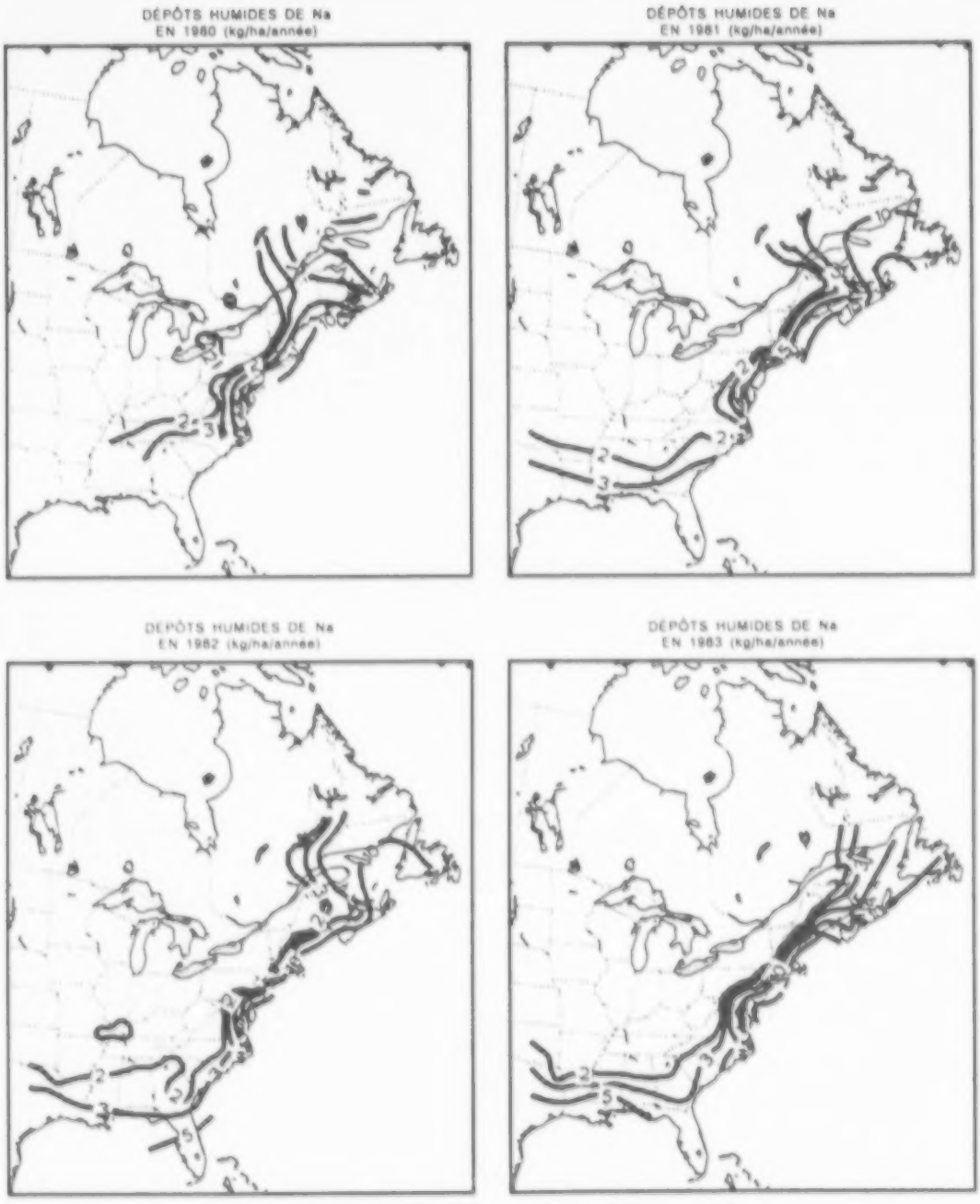


Figure 3B-33 Répartitions des dépôts humides annuels de Na^+ (kg/ha/année) : 1980 à 1983.

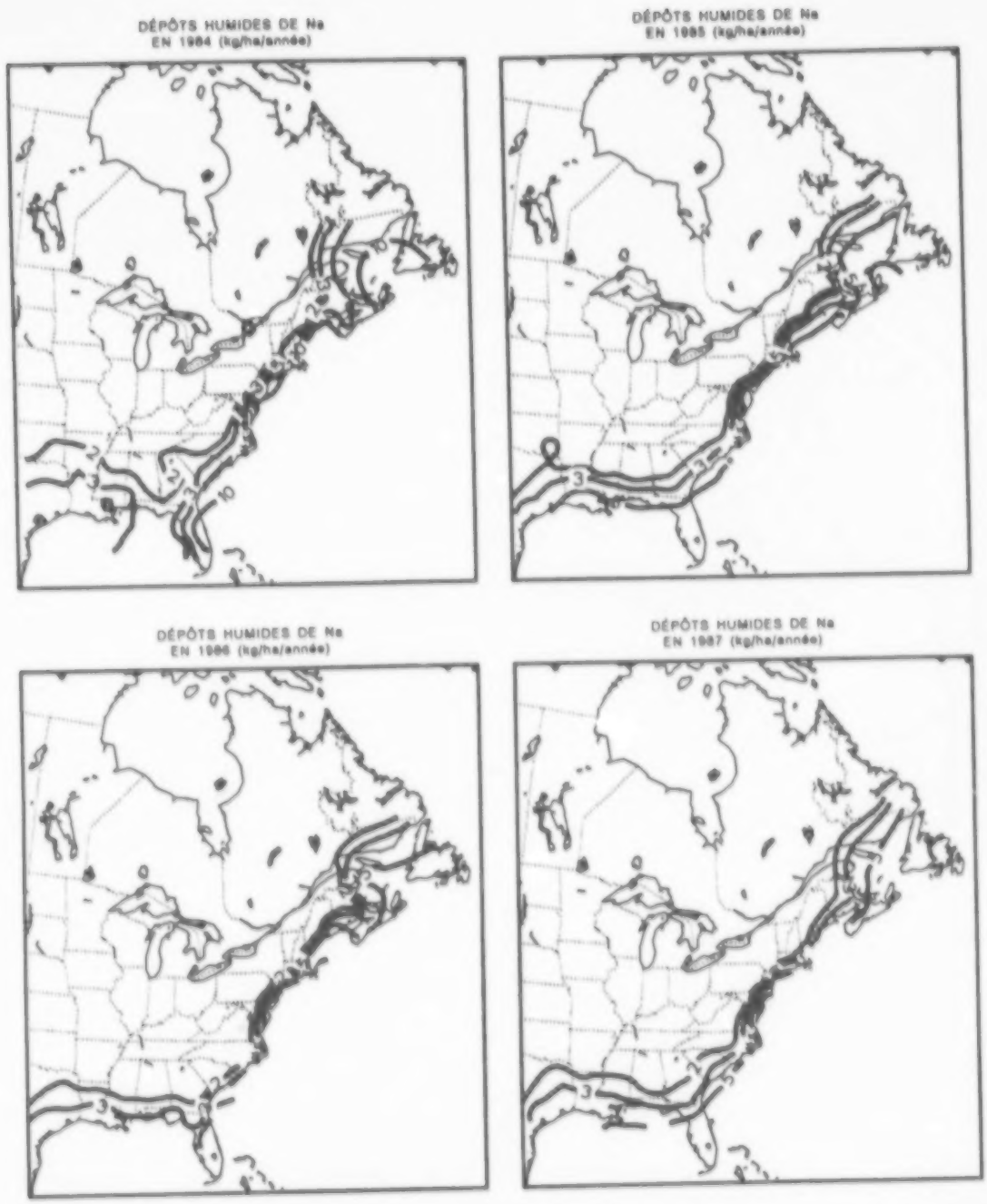


Figure 3B-34 Répartitions des dépôts humides annuels de Na^+ (kg/ha/année) : 1984 à 1987.

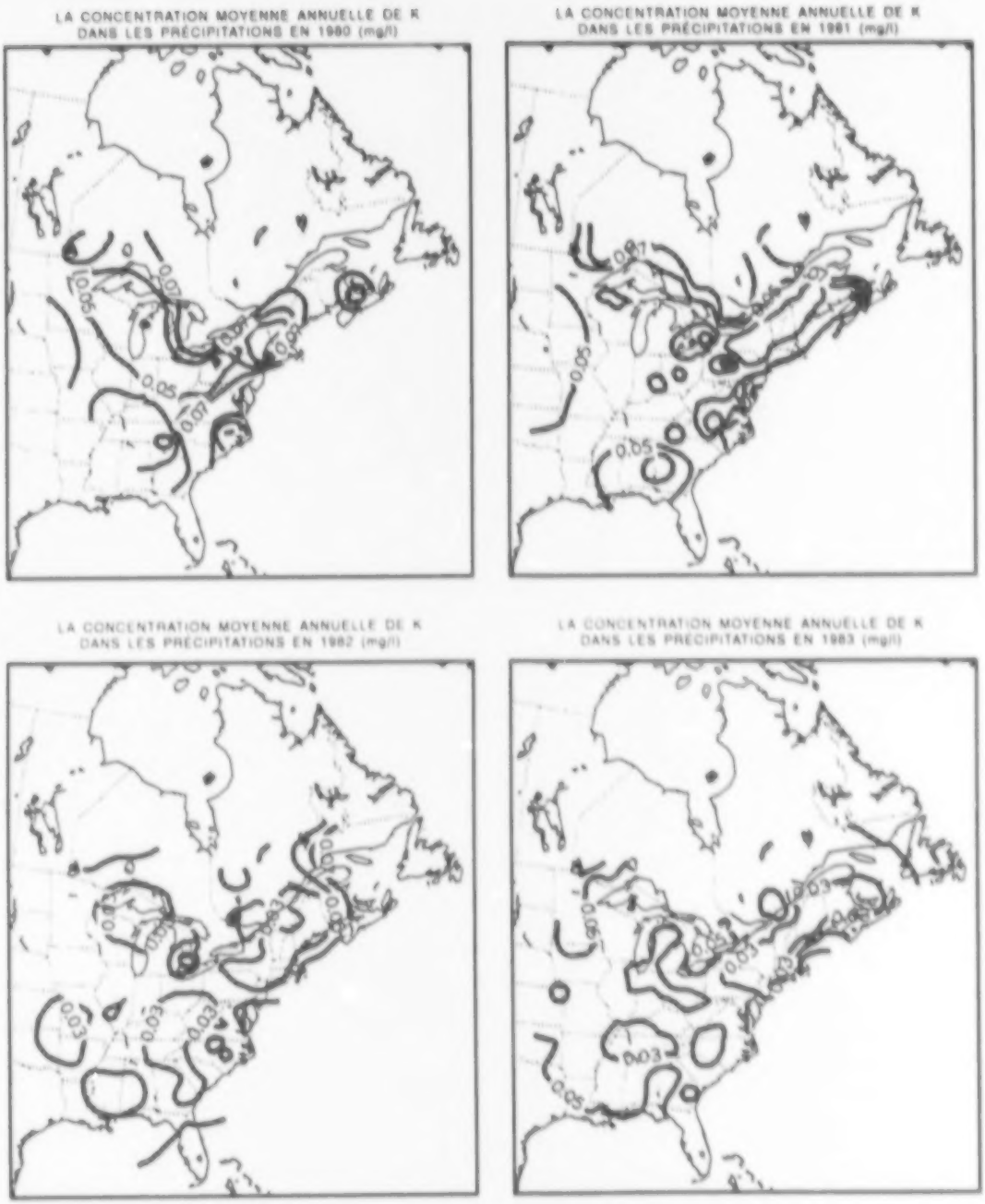


Figure 3B-35 Répartitions des précipitations annuelles - Concentrations moyennes pondérées de K^+ (mg/l) : 1980 à 1983.

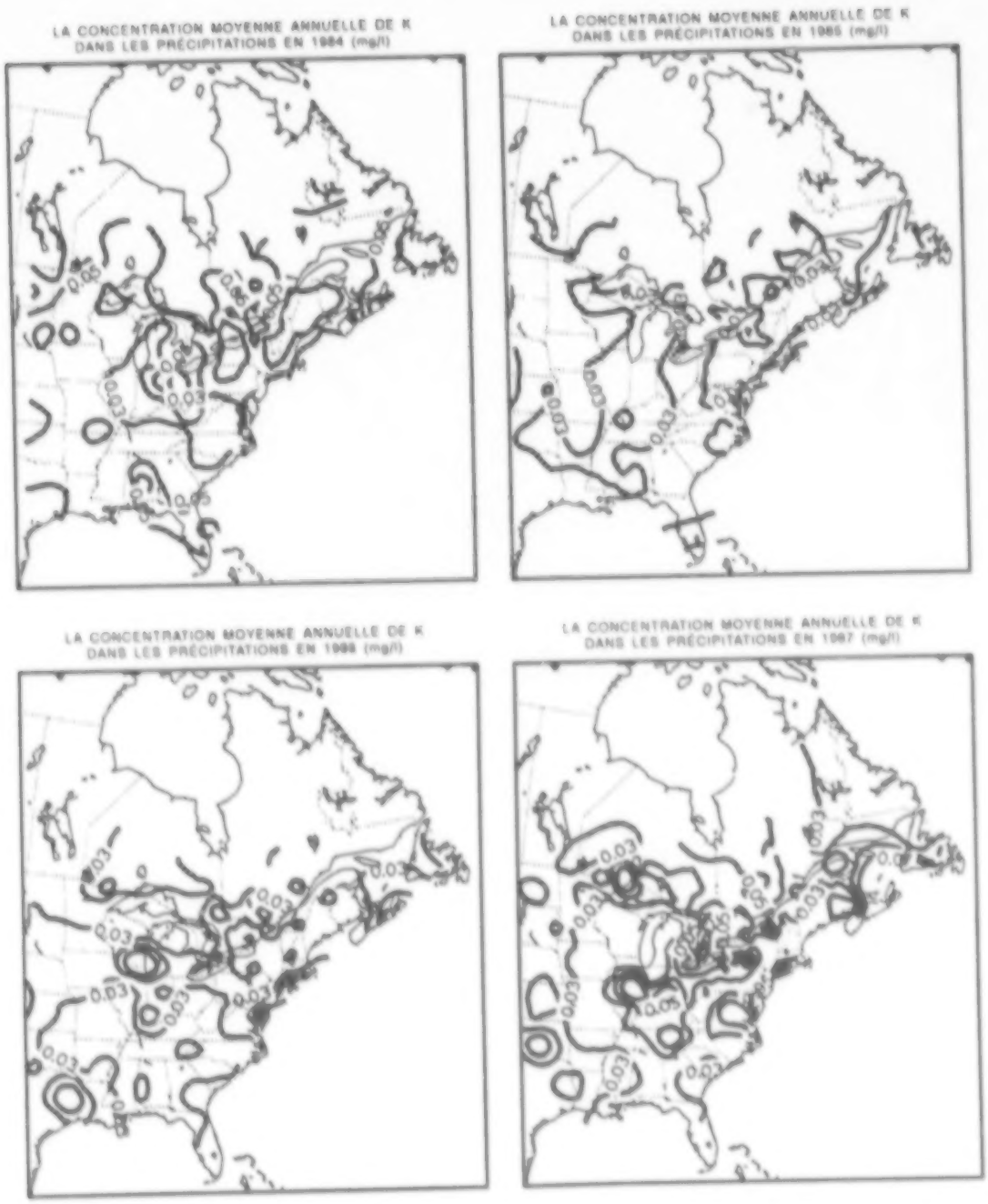


Figure 3B-36 Répartitions des précipitations annuelles - Concentrations moyennes pondérées de K^+ (mg/l) : 1984 à 1987.

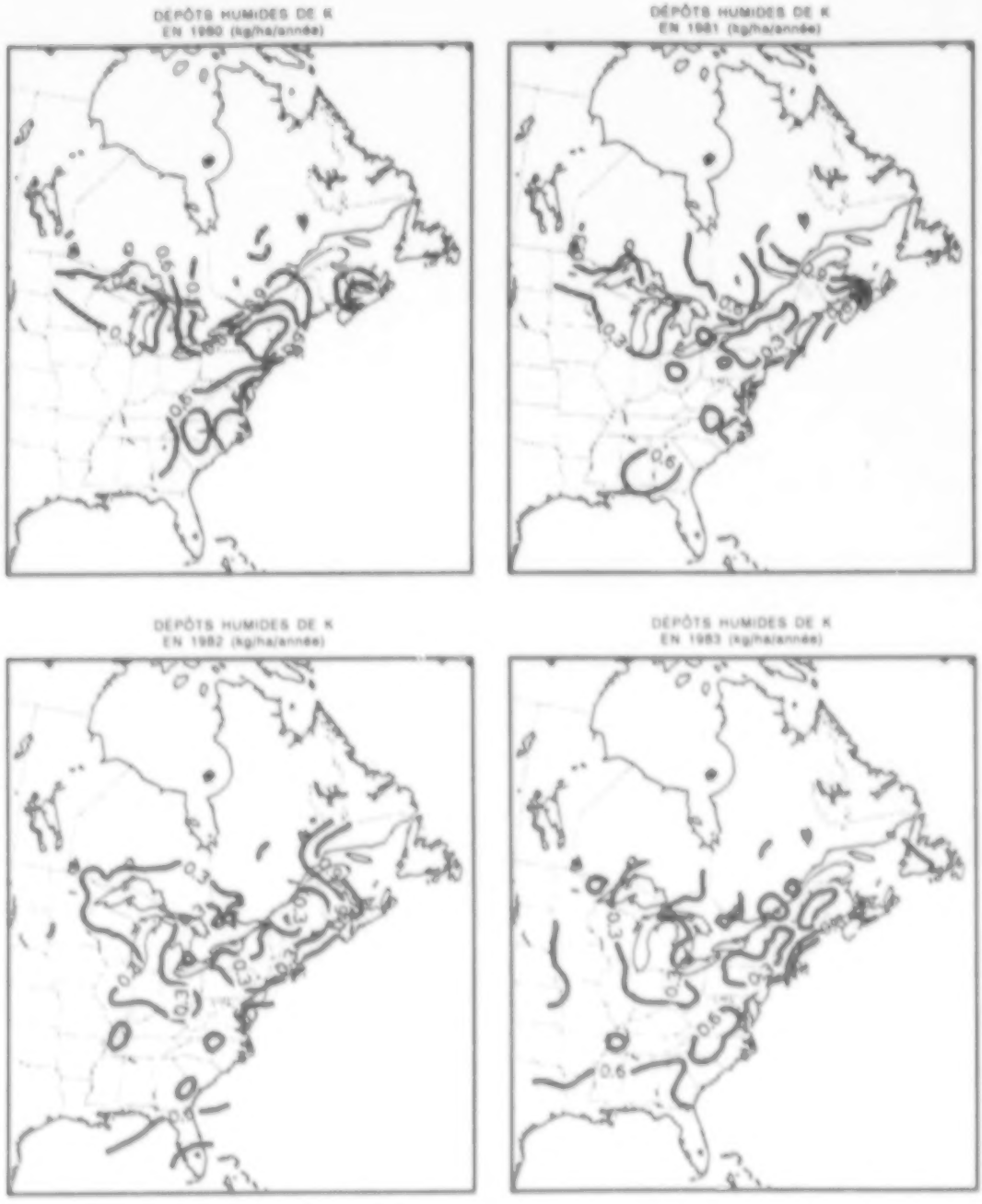


Figure 3B-37 Répartitions des dépôts humides annuels de K^+ (kg/ha/année) : 1980 à 1983.

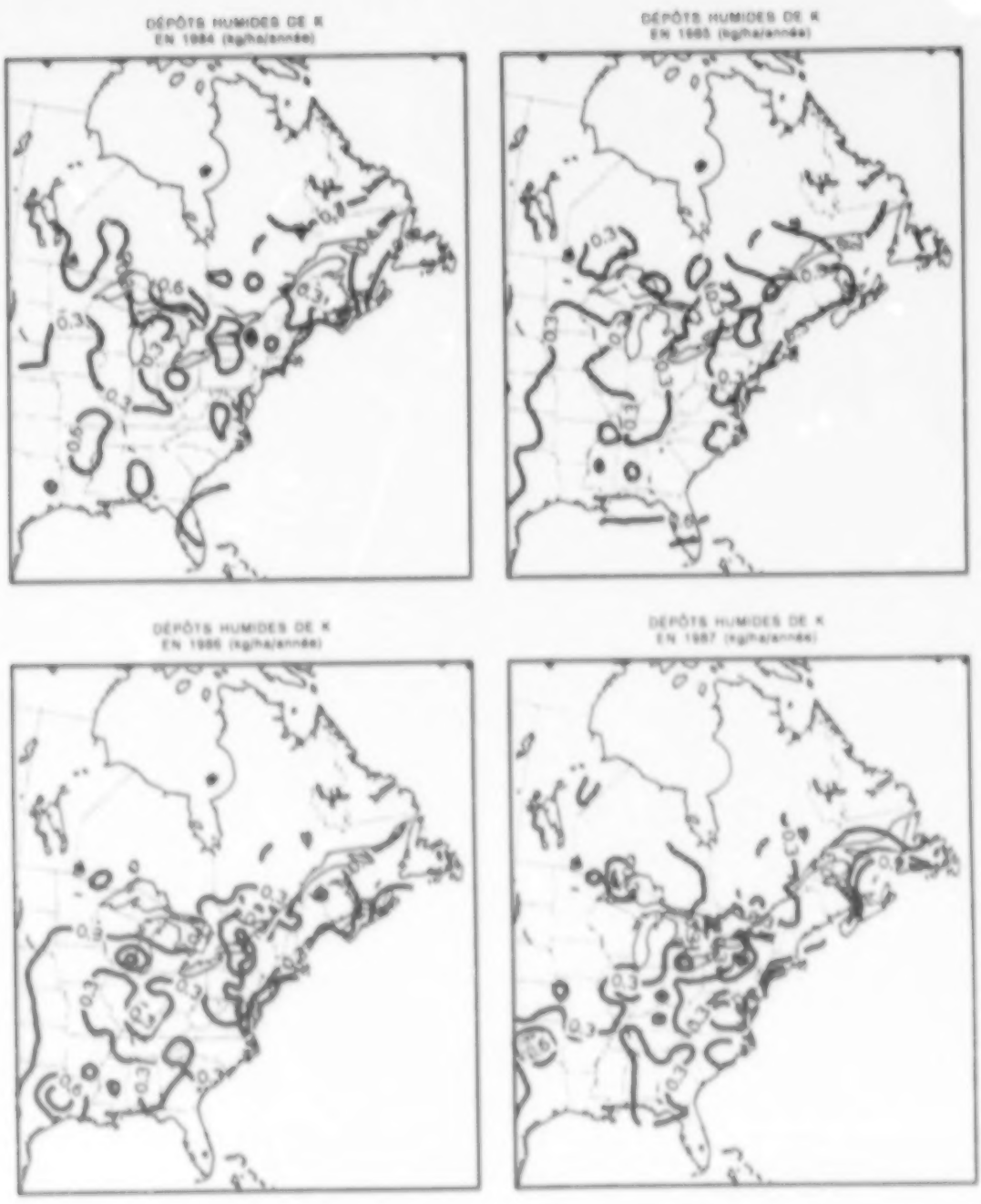


Figure 3B-38 Répartitions des dépôts humides annuels de K^+ (kg/ha/année) : 1984 à 1987.

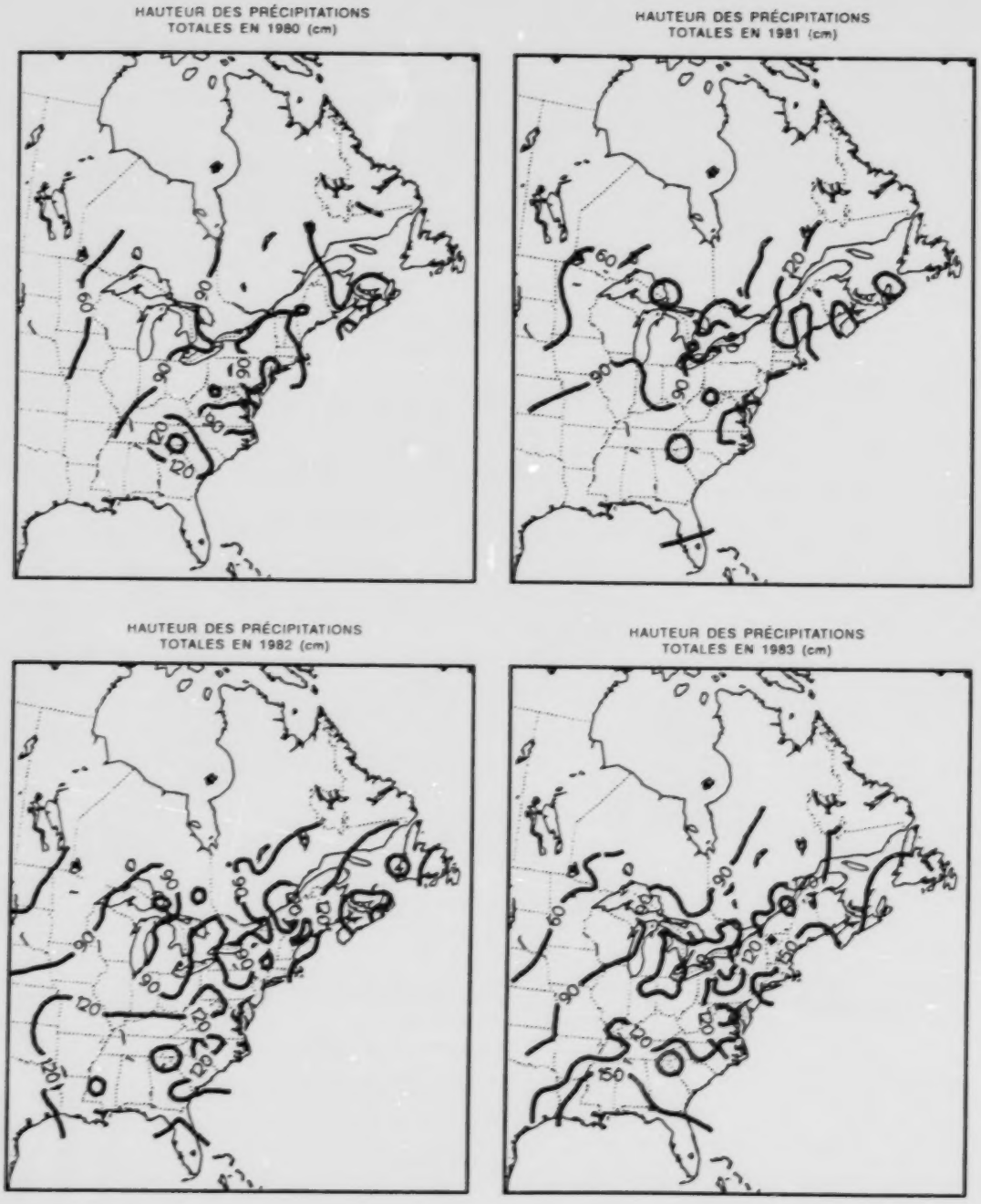


Figure 3B-39 Répartitions de la hauteur des précipitations totales (cm) : 1980 à 1983.

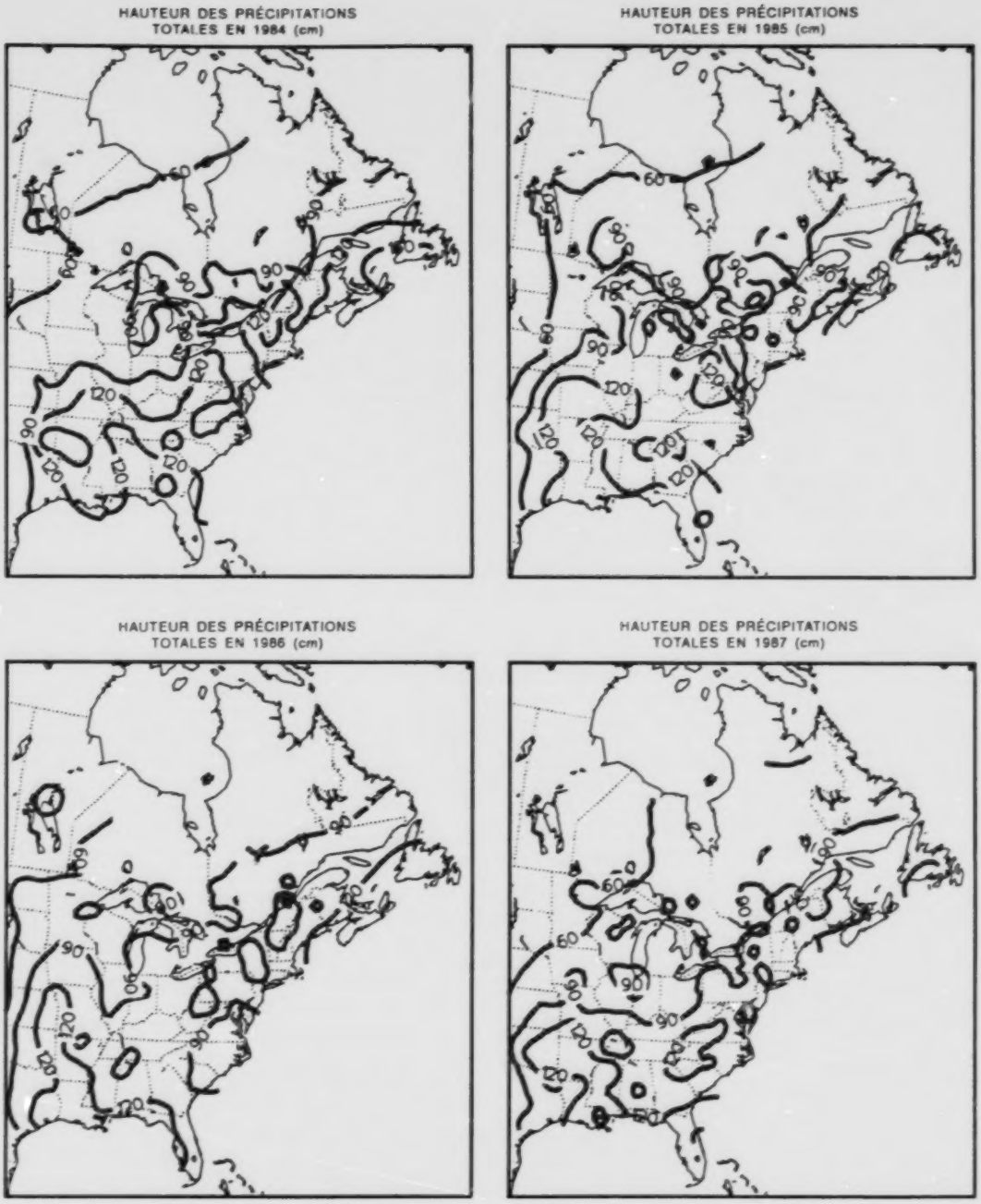


Figure 3B-40 Répartitions de la hauteur des précipitations totales (cm) : 1984 à 1987.

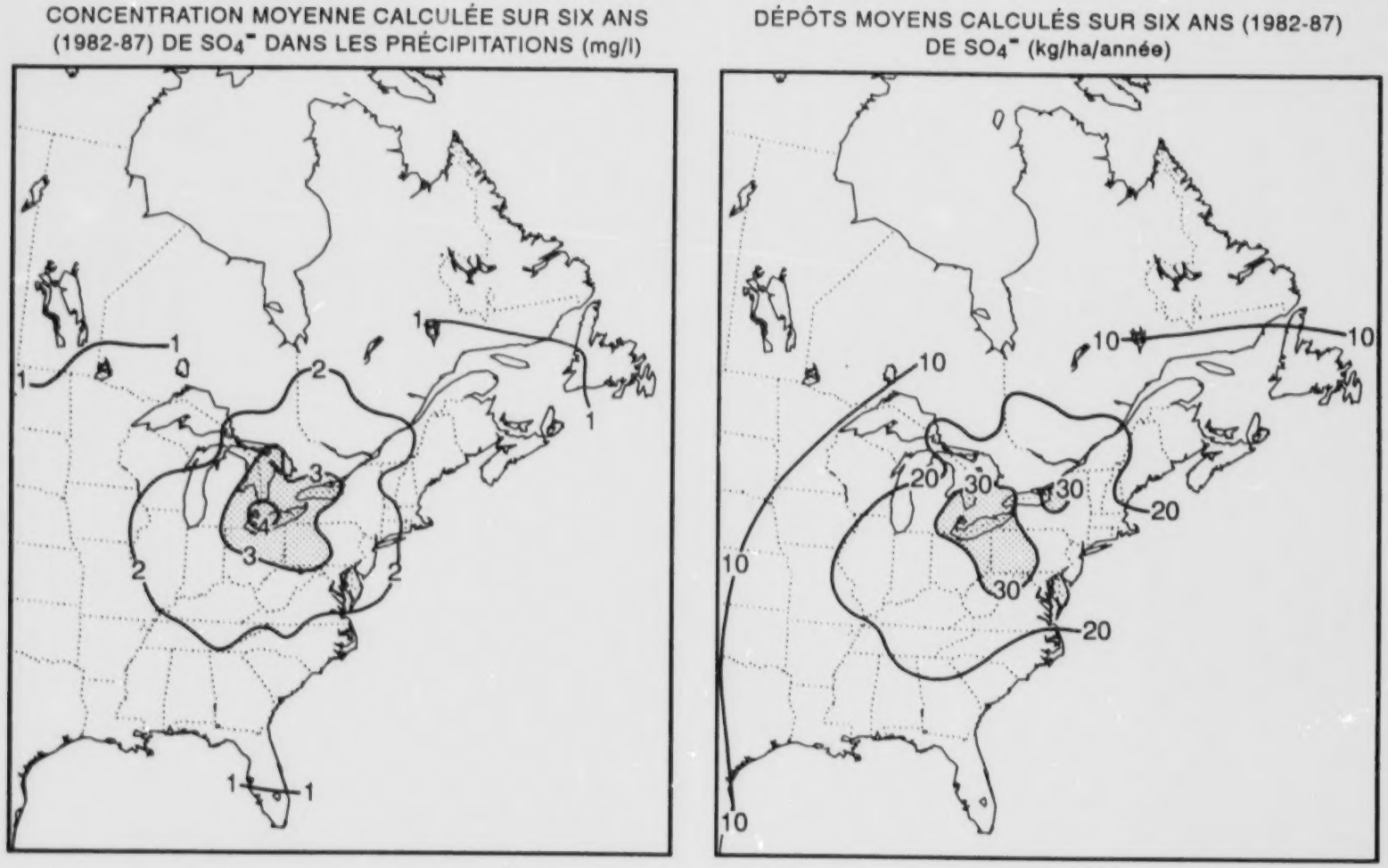


Figure 3B-41 Répartitions de la moyenne calculée sur six ans des concentrations et des dépôts de $SO_4^=$ (1982 à 1987).

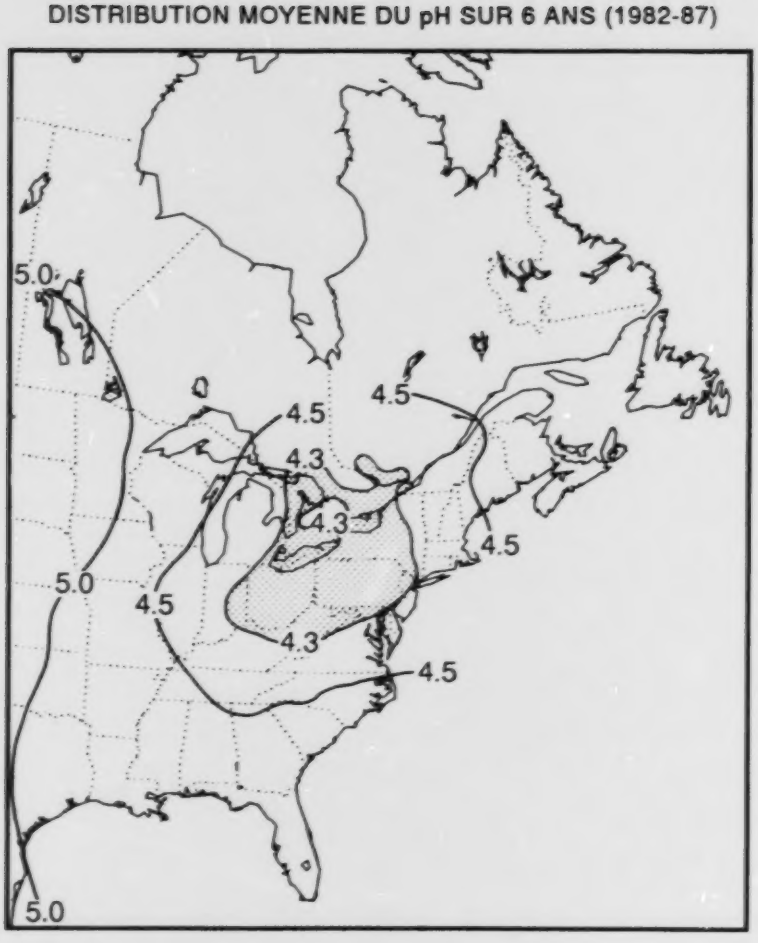


Figure 3B-42 Répartition du pH moyen calculé sur six ans (1982 à 1987).

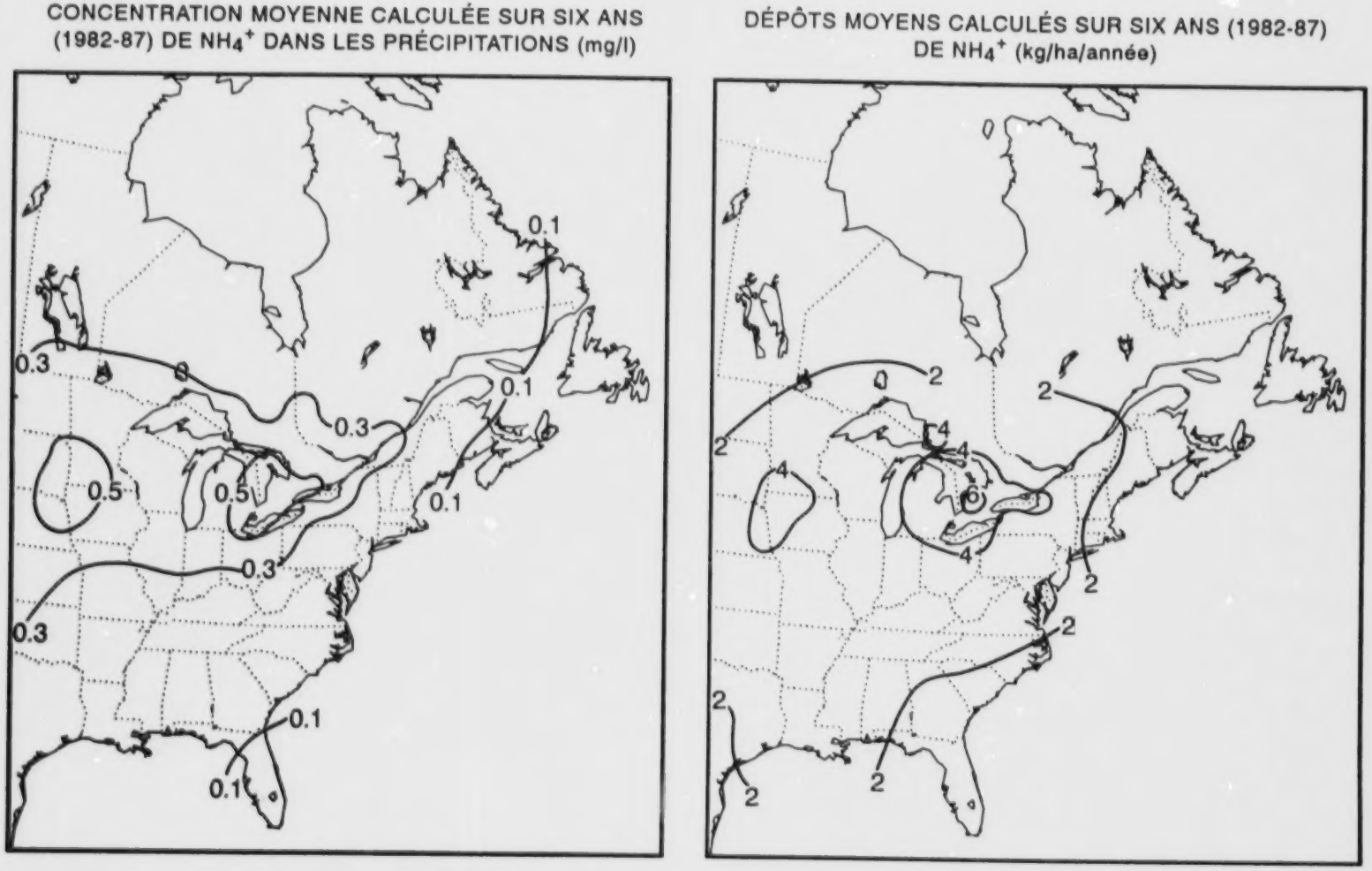


Figure 3B-43 Répartitions de la moyenne calculée sur six ans des concentrations et des dépôts de NH_4^+ (1982 à 1987).

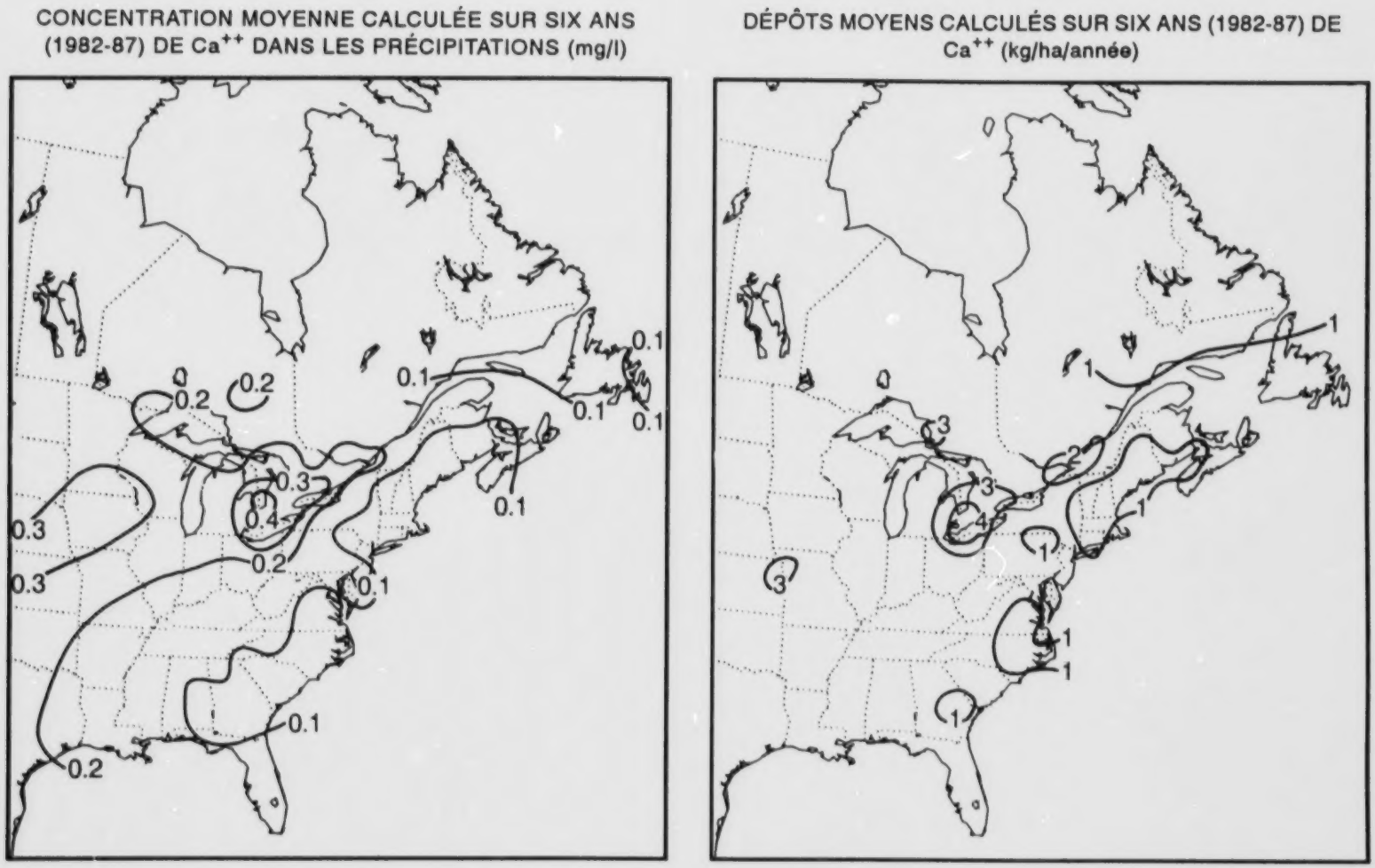


Figure 3B-44 Répartitions de la moyenne calculée sur six ans des concentrations et des dépôts de Ca^{+2} (1982 à 1987).

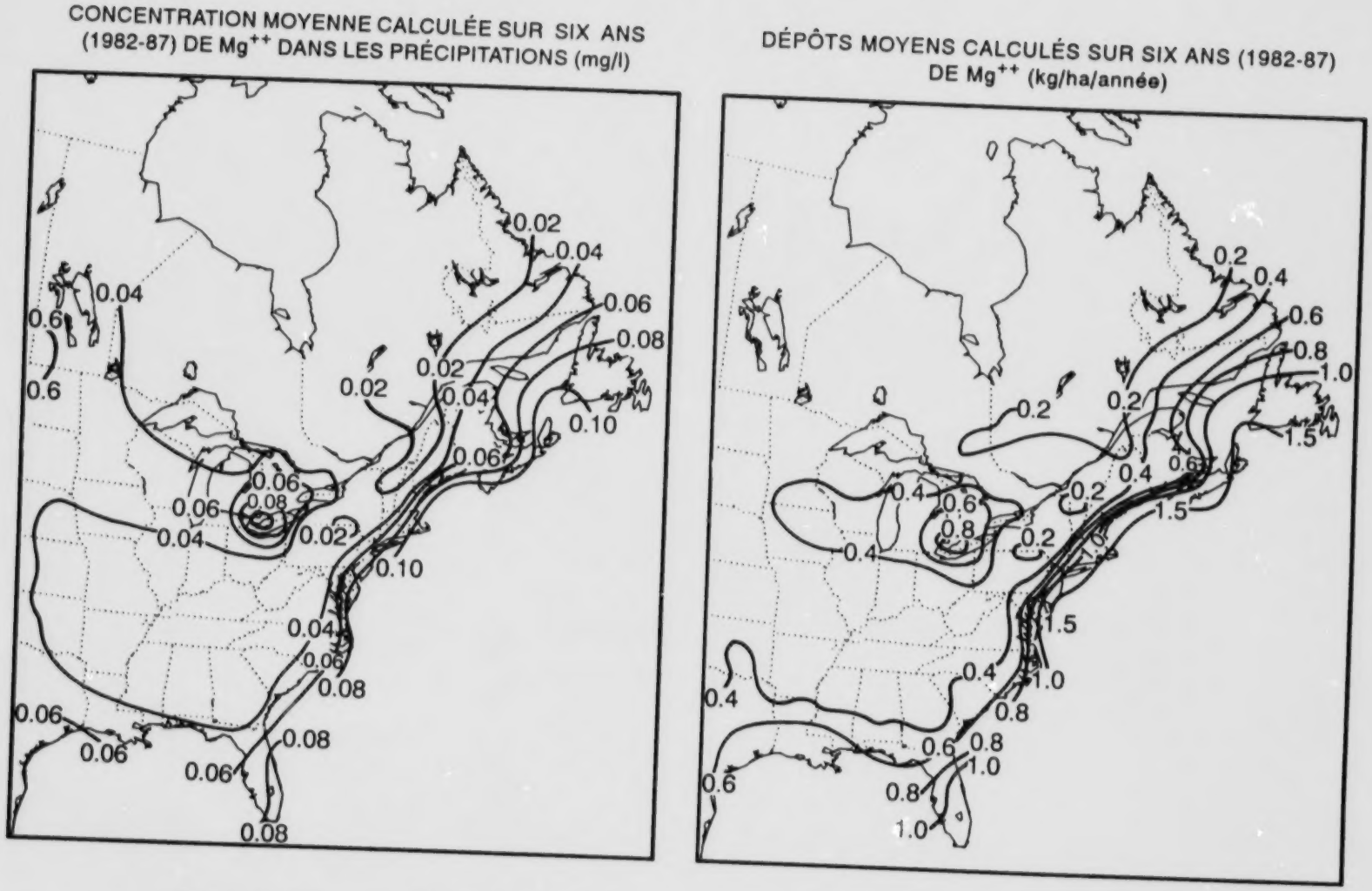


Figure 3B-45 Répartitions de la moyenne calculée sur six ans des concentrations et des dépôts de Mg^{+2} (1982 à 1987).

CONCENTRATION MOYENNE CALCULÉE SUR SIX ANS (1982-87) DE Cl^- DANS LES PRÉCIPITATIONS (mg/l)

DÉPÔTS MOYENS CALCULÉS SUR SIX ANS (1982-87) DE Cl^- (kg/ha/année)

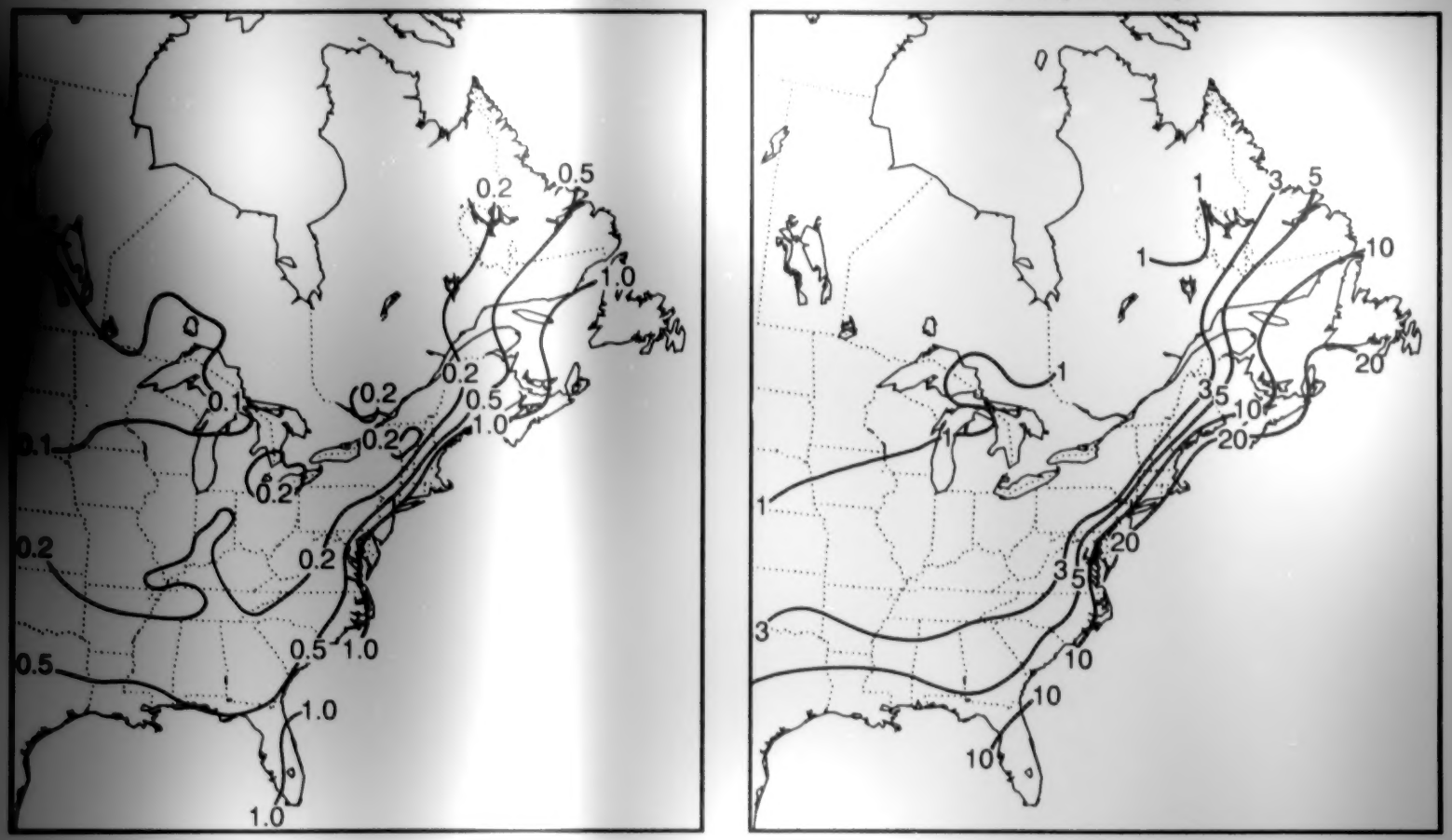


Figure 3B-46 Répartitions de la moyenne calculée sur six ans des concentrations et des dépôts de Cl^- (1982 à 1987).

CONCENTRATION MOYENNE CALCULÉE SUR SIX ANS (1982-87) DE Na^{++} DANS LES PRÉCIPITATIONS (mg/l)

DÉPÔTS MOYENS CALCULÉS SUR SIX ANS (1982-87) DE Na^{++} (kg/ha/année)

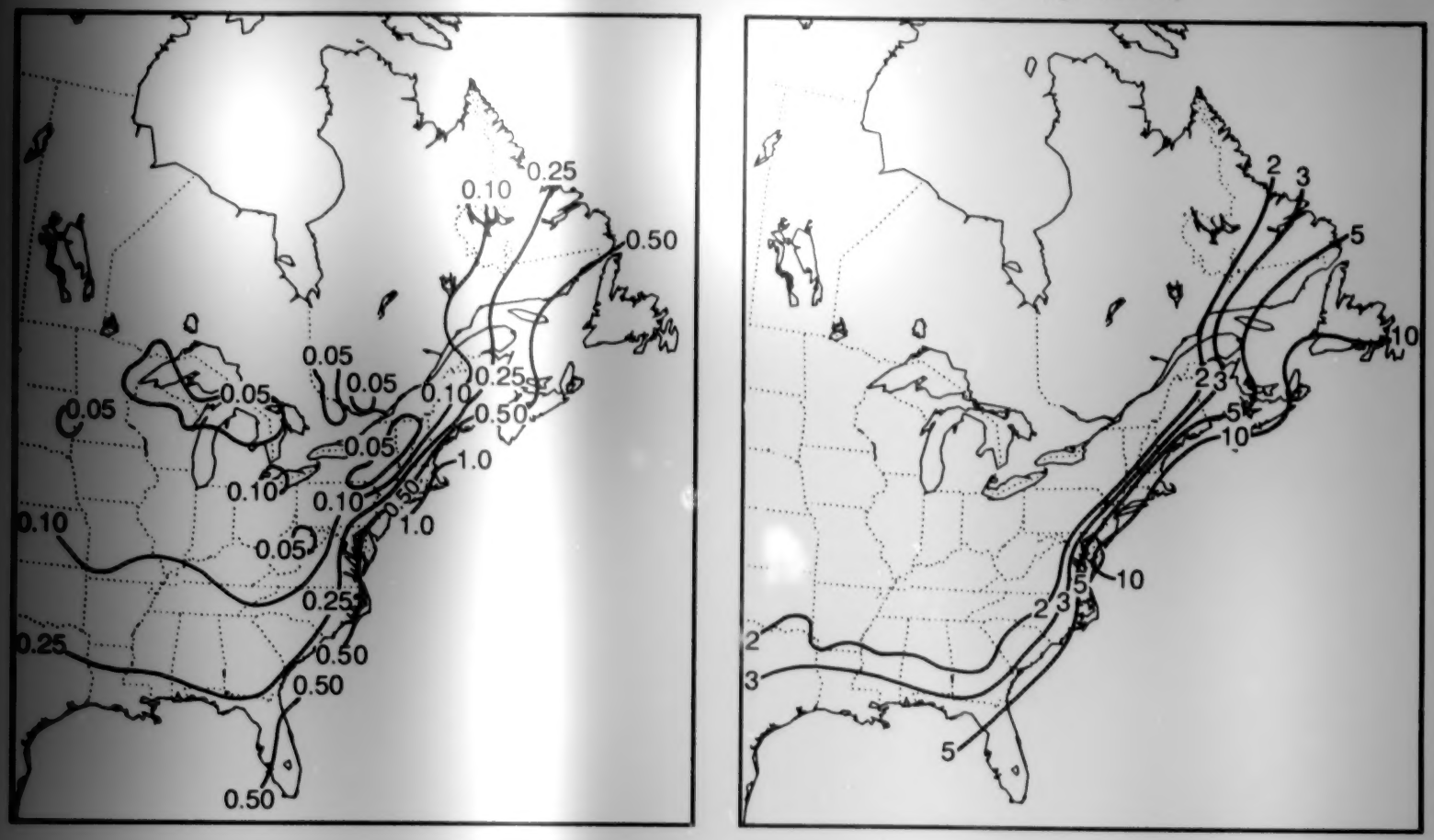


Figure 3B-47 Répartitions de la moyenne calculée sur six ans des concentrations et des dépôts de Na^{+} (1982 à 1987).

CONCENTRATION MOYENNE CALCULÉE SUR SIX ANS (1982-87) DE K^+ DANS LES PRÉCIPITATIONS (mg/l)

DÉPÔTS MOYENS CALCULÉS SUR SIX ANS (1982-87) DE K^+ (kg/ha/année)

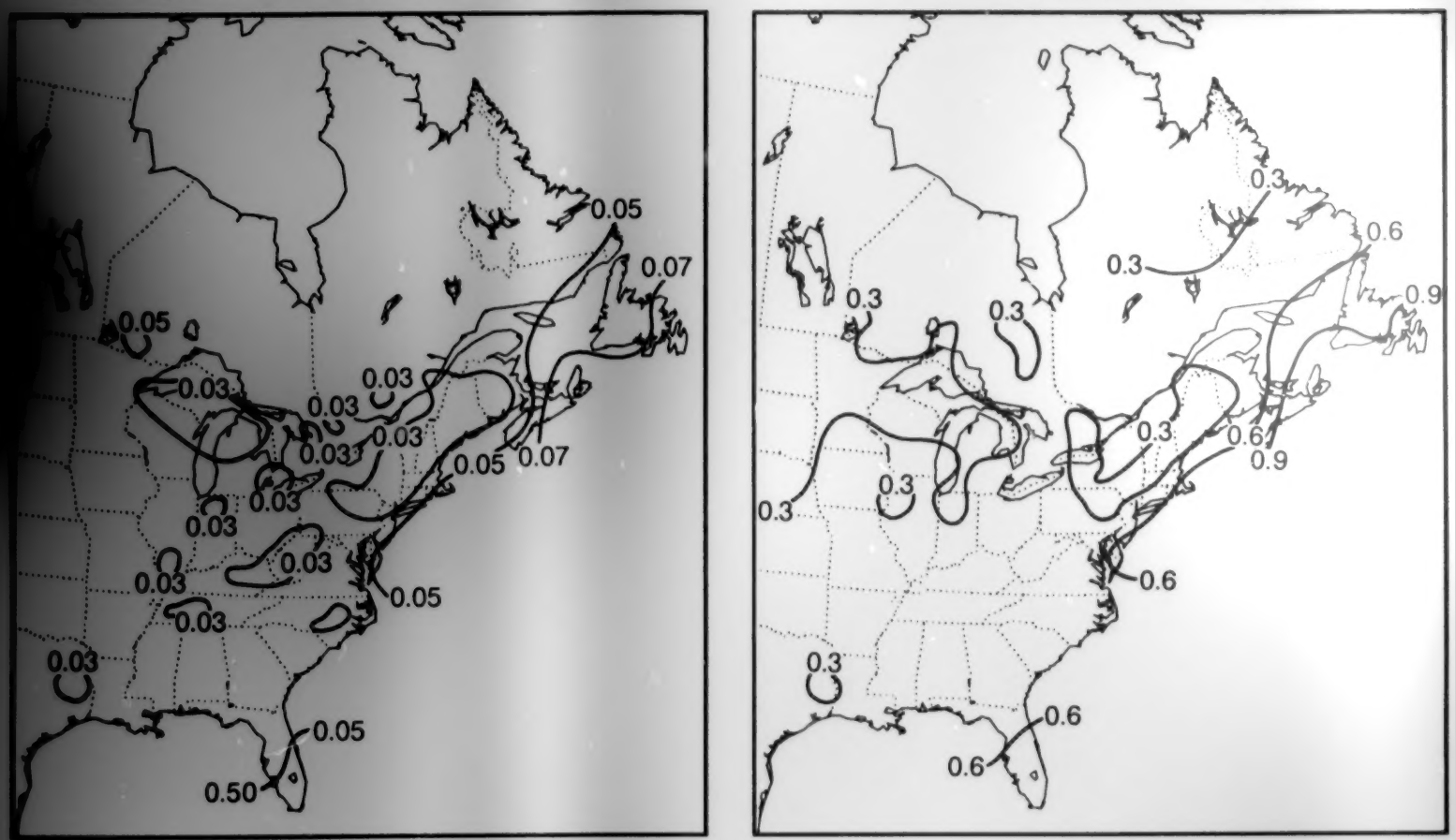


Figure 3B-48 Répartitions de la moyenne calculée sur six ans des concentrations et des dépôts de K^+ (1982 à 1987).

ANNEXE 3C

DISTRIBUTIONS SPATIALES ET TEMPORELLES DES CONCENTRATIONS ATMOSPHÉRIQUES DE SULFATES ET DE NITRATES EN ONTARIO

LISTE DES FIGURES DE L'ANNEXE 3C

FIGURE n°		PAGE
3C-1	Enveloppe des isoplèthes de 1 $\mu g/m^3$ et de 4 $\mu g/m^3$ pour le SO_2 en Ontario : 1982 à 1986.	3-283
3C-2	Enveloppe des isoplèthes de 2 $\mu g/m^3$ et de 4 $\mu g/m^3$ pour le $SO_4^=$ en Ontario : 1982 à 1986.	3-283
3C-3	Enveloppe des isoplèthes de 0,2 μg N/m^3 et de 0,6 μg N/m^3 pour le NO_3^- en Ontario : 1982 à 1986.	3-283

ANNEXE C

DISTRIBUTIONS SPATIALES ET TEMPORELLES DES CONCENTRATIONS ATMOSPHÉRIQUES DE SULFATES ET DE NITRATES EN ONTARIO

Introduction

En Ontario, le réseau cumulatif APIOS (Étude sur les précipitations acides en Ontario) mesure les concentrations atmosphériques des sulfates, d'anhydride sulfureux et de tous les nitrates (Chan et al. 1985). Dans le présent document, les concentrations annuelles moyennes sont illustrées dans des cartes d'isoplèthes pour permettre l'évaluation des distributions spatiales et d'étudier les changements survenus d'année en année dans ces distributions.

Méthodologie

Le réseau cumulatif APIOS mesure les concentrations atmosphériques à l'aide d'une technique faisant appel à un échantillonnage sur filtres à faible volume. Les sulfates et les nitrates particulaires sont recueillis sur un filtre de téflon. Cette étape est suivie par l'absorption sélective de l'acide nitrique sur un filtre de nylon, puis par l'absorption du SO_2 sur deux filtres de cellulose imprégnés de carbonate de sodium dans du glycérol. Le taux d'écoulement de l'air à travers la garniture est de 2 litres par minute, et les filtres sont exposés pendant 28 jours. En raison des artéfacts expérimentaux qui peuvent s'introduire au cours de la séparation des nitrates en nitrates particulaires et en acide nitrique, durant la période de déploiement du dispositif sur le terrain, il n'a été fait aucun effort pour faire la distinction entre les deux composés dans les données du réseau cumulatif. Leur somme est consignée plutôt comme une mesure des nitrates totaux.

Les figures 3.2.24a (SO_2), 3.2.24b (SO_4) et 3.2.24c (nitrates totaux) présentent les isoplèthes des concentrations déterminées à l'aide de la méthode de krigeage. L'analyse porte sur les données recueillies à partir de 1982, première année complète de fonctionnement du réseau, jusqu'en 1986.

Discussion

Pour tous les composés étudiés, on observe un gradient qui décroît fortement du sud vers le nord de la province. Ce gradient correspond aux emplacements connus des principales régions sources de SO_2 et de NO_x, qui se trouvent soit dans le sud de l'Ontario ou, plus au sud, aux États-Unis. Les seules exceptions sont les fonderies de Sudbury et de Noranda (Québec), qui constituent des sources importantes de SO_2. Cependant, l'effet de ces fonderies est peu évident d'après les cartes de concentrations des sulfates ou d'anhydride sulfureux. Les distributions spatiales concordent également avec les répartitions des concentrations dans les précipitations; celles-ci font l'objet d'une

discussion à l'annexe 3B. En effet, ces dernières indiquent également des concentrations plus élevées dans le sud-ouest de l'Ontario.

Les répartitions des concentrations de SO_2 sont très semblables pour 1982, 1983, 1984 et 1985; la région de Muskoka-Haliburton a enregistré des valeurs d'environ 3 $\mu g\ m^{-3}$ et celle de Thunder Bay, d'environ 1 à 2 $\mu g\ m^{-3}$. L'année 1986 montre une diminution évidente des concentrations d'anhydride sulfureux dans le centre et le sud de l'Ontario. Tous les isoplèthes sont décalés vers le sud, par comparaison avec celles des années précédentes, et des concentrations proportionnellement plus faibles ont été déterminées dans toutes les régions de la province. Le résumé de ces observations se trouve à la figure 3.2.25, qui compare les courbes de niveau de 1982 et 1983 à celles de 1985 et 1986.

Il semble qu'un changement s'est produit dans l'allure des isoplèthes depuis 1983; en effet, on observe des teneurs d'anhydride sulfureux plus élevées que les années précédentes sur la rive nord du lac Huron. Il est difficile de relier ce changement dans la distribution à des changements dans les émissions d'une région particulière. Toutefois, on peut noter que les émissions de SO_2 enregistrées en Ontario, en Ohio et en Indiana ont toutes subi une hausse entre 1983 et 1984.

Les concentrations de sulfates se comportent de façon très semblables à celles du SO_2. En effet, les répartitions des premières années sont très similaires. Dans ce cas cependant, il semble y avoir eu un décalage vers le sud des isoplèthes, en 1985; cette dernière année et 1986 étant semblables. Les concentrations de sulfates ont varié entre 3 et 4 $\mu g\ m^{-3}$ dans la région de Muskoka-Haliburton. La figure 3.2.26 montre le contraste entre les lignes de niveau moyennes de 1982-1983 et celles de 1985-1986.

D'après la comparaison des moyennes de 1982-1983 et de 1985-1986 (figure 3C-4), les changements dans les configurations des concentrations des nitrates ont été faibles. Les concentrations atmosphériques des nitrates varient entre environ 0,6 et 1,5 $\mu g\ m^{-3}$ dans le sud de l'Ontario et ont une valeur de moins de 0,2 $\mu g\ m^{-3}$ dans la majeure partie du nord de l'Ontario. Les figures 3C-1 à 3C-3 présentent les enveloppes d'isoplèthes choisis pour le SO_2 (3C-1), les sulfates (3C-2) et les nitrates (3C-3). Ces enveloppes représentent la période couverte par les données, c'est-à-dire 1982 à 1986 et indiquent en outre, le peu d'importance des changements dans les concentrations de nitrates d'une année à l'autre, par comparaison avec celles des deux autres composés (SO_2 et $SO_4^{=}$).

Les répartitions des concentrations atmosphériques d'anhydride sulfureux, de sulfates et des nitrates totaux concordent avec l'emplacement des principales régions sources situées au sud et à l'ouest des régions vulnérables du centre de l'Ontario. Les changements survenus au cours des quelques dernières années dans les distributions des concentrations correspondent également à l'historique des émissions des principaux émetteurs. Cependant, il n'est pas possible de déterminer plus précisément les régions sources d'après les données, sans procéder à une analyse plus détaillée.

Conclusion

Les principales conclusions tirées de cette études sont :

i) en Ontario, les concentrations atmosphériques d'anhydride sulfureux, des sulfates et de tous les nitrates décroissent fortement du sud vers le nord;

ii) les isoplèthes obtenus pour l'anhydride sulfureux et les sulfates se sont déplacés légèrement vers le sud au cours de la période d'étude, ce qui correspond à une diminution des concentrations dans la plupart des endroits;

iii) les répartitions des concentrations de nitrates ont changé relativement peu au cours de la même période.

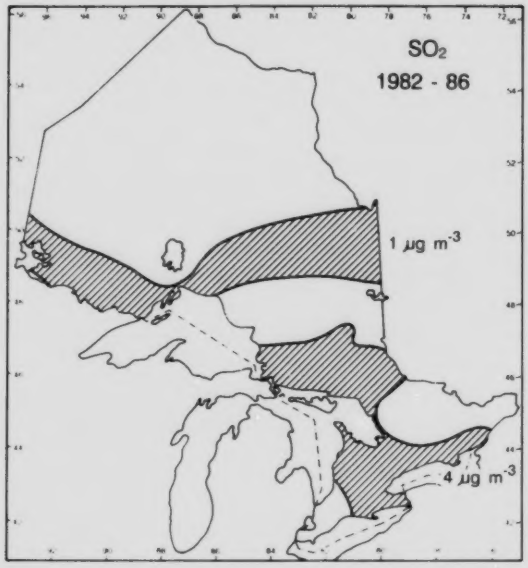


Figure 3C-1 Enveloppe des isoplèthes de 1 $\mu g/m^3$ et de 4 $\mu g/m^3$ pour le SO_2 en Ontario : 1982 à 1986.

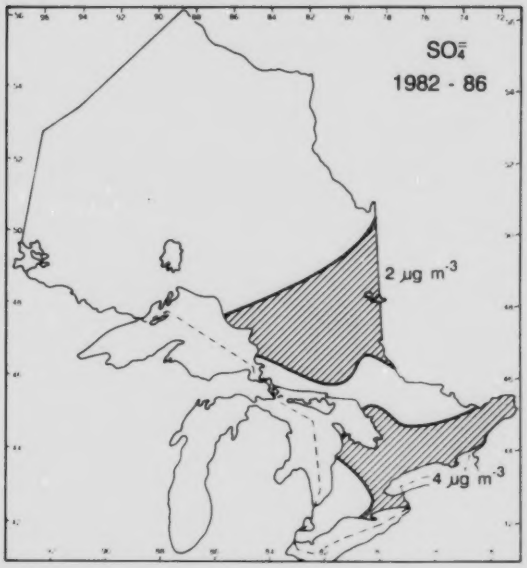


Figure 3C-2 Enveloppe des isoplèthes de 2 $\mu g/m^3$ et de 4 $\mu g/m^3$ pour le $SO_4^=$ en Ontario : 1982 à 1986.

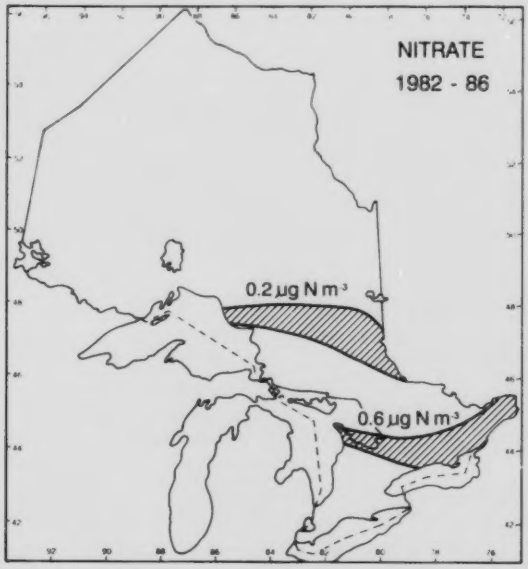


Figure 3C-3 Enveloppe des isoplèthes de 0,2 μg N/m^3 et de 0,6 μg N/m^3 pour le NO_3^- en Ontario : 1982 à 1986.

ANNEXE 3D

VARIATION EN FONCTION DU TEMPS DES CONCENTRATIONS DE SULFATES ET DE NITRATES DANS L'AIR ET DANS LES PRÉCIPITATIONS À CINQ SITES DE L'EST DU CANADA

LISTE DES TABLEAUX DE L'ANNEXE 3D

TABLEAU n°		PAGE
3D-1	Résumé des résultats d'analyse des séries chronologiques des concentrations atmosphériques de $SO_4^=$ et de NO_3^- à 5 sites ruraux de l'est du Canada. N représente le nombre de données utilisé, et R^2, la fraction de la variance totale expliquée par le modèle. "O" indique que cette composante est présente dans le modèle, et "N", qu'elle est absente.	3-301
3D-2	Résumé des résultats d'analyse des séries chronologiques des concentrations atmosphériques de $SO_4^=$, de SO_2 et de NO_3^- à 5 sites ruraux de l'est du Canada. N représente le nombre de données utilisé, et R^2, la fraction de la variance totale expliquée par le modèle. "O" indique que cette composante est présente dans le modèle, et "N", qu'elle est absente.	3-301
3D-3	Résumé des résultats d'analyse des séries chronologiques des concentrations atmosphériques de $SO_4^=$, de SO_2 et de NO_3^- observées à E.L.A. et à Kejimkujik pour quatre différents secteurs d'origine. N représente le nombre de données utilisé, et R^2, la fraction de la variance totale expliquée par le modèle. "O" indique que cette composante est présente dans le modèle, et "N", qu'elle est absente.	3-302
3D-4	Fréquence d'occurence des quatre secteurs définis dans la figure 3D-14 pour les concentrations atmosphériques quotidiennes de $SO_4^=$, de SO_2 et des NO_3 totaux à E.L.A. et à Kejimkujik.	3-303

LISTE DES FIGURES DE L'ANNEXE 3D

FIGURE n°		PAGE
3D-1	Variation temporelle des concentrations moyennes mensuelles pondérées en fonction des précipitations du $SO_4^=$ dans les précipitations dans la région E.L.A. (Experimental Lakes Area) (a) et à Chalk River (b). Les points et les carrés représentent respectivement les valeurs observées et les valeurs modélisées.	3-304
3D-2	Tendance à long terme ($C_0 + f^t(t)$) des concentrations de $SO_4^=$ dans les précipitations normalisées d'après 1980 (première année complète d'inventaire) (ligne traitillée : tendance continue; lignes continues : valeurs annuelles normalisées). Seuls les emplacements dont les tendances sont statistiquement significatives sont montrés.	3-305
3D-3	Idem figure 3D-2 pour le NO_3^- dans les précipitations.	3-306
3D-4	Tendance à long terme et cycle à long terme ($C_0 + f^t(t) + f^c(t)$) des concentrations de $SO_4^=$ dans les précipitations normalisées d'après 1980 (première année complète d'inventaire) (ligne traitillée : tendance continue; lignes continues : valeurs annuelles normalisées). Seuls les emplacements dont les tendances sont statistiquement significatives sont montrés.	3-307
3D-5	Idem figure 3D-4 pour le NO_3^- dans les précipitations.	3-308
3D-6	Variation temporelle de la médiane mensuelle des concentrations atmosphériques de $SO_4^=$ (a), de SO_2 (b), et de tous les NO_3 (c) pour la région E.L.A. (ligne traitillée : valeurs modélisées; lignes continues : valeurs observées).	3-309
3D-7	Idem figure 3D-6 pour Kejimkujik.	3-310
3D-8	Idem figure 3D-2, mais pour les médianes mensuelles des concentrations atmosphériques de $SO_4^=$.	3-311
3D-9	Idem figure 3D-8 pour le SO_2 dans l'air.	3-312
3D-10	Idem figure 3D-8 pour tous les NO_3^- dans l'air.	3-313
3D-11	Idem figure 3D-2 pour les médianes mensuelles des concentrations atmosphériques de $SO_4^=$.	3-314
3D-12	Idem figure 3D-11 pour le SO_2 dans l'air.	3-315

LISTE DES FIGURES (suite)

FIGURE n°		PAGE
3D-13	Idem figure 3D-11 pour tous les NO_3^- dans l'air.	3-316
3D-14	Définition des secteurs délimités pour les sulfates et les nitrates dans la région E.L.A et à Kejimkujik.	3-317
3D-15	Graphiques de boîtes représentant les concentrations atmosphériques de SO_3^-, de SO_2 et de tous les NO_3^- pour les secteurs définis à la figure 3D-14, dans la région E.L.A. et à Kejimkujik. Dans chaque boîte, la ligne centrale représente la médiane, et les limites inférieure et supérieure, les valeurs du premier et du troisième quartile, respectivement. Les lignes qui se prolongent verticalement à partir des boîtes indiquent l'étendue de la distribution, leur longueur étant 1,5 fois la différence entre la valeur du premier et du troisième quartile. Les observations qui se trouvent au-delà des limites de ces lignes sont considérées comme des valeurs aberrantes et sont indiquées par des points. Les étoiles se trouvant sur la ligne verticale indiquent les valeurs maximales et minimales observées qui ne sont pas aberrantes. Les carrés noirs représentent les moyennes géométriques mensuelles.	3-318
3D-16	Variation temporelle des médianes mensuelles des concentrations atmosphériques de $SO_4^=$ dans la région E.L.A. pour les secteurs définis dans la figure 3D-14 (ligne traitillée : valeurs modélisées; points : valeurs observées).	3-319
3D-17	Idem figure 3D-16 pour le SO_2.	3-320
3D-18	Idem figure 3D-16 pour tous les NO_3^-.	3-321
3D-19	Variation temporelle de la médiane des concentrations atmosphériques mensuelles de $SO_4^=$ à Kejimkujik pour les secteurs définis à la figure 3D-14 (ligne traitillée : valeurs modélisées; points : valeurs observées).	3-322
3D-20	Idem figure 3D-19 pour le SO_2.	3-323
3D-21	Idem figure 3D-19 pour tous les NO_3^-.	3-324

LISTE DES FIGURES (suite)

FIGURE n°		PAGE
3D-22	Intersection et tendance à long terme de la médiane mensuelle des concentrations atmosphériques de SO_2 dans la région E.L.A normalisée d'après 1980 pour les quatre secteurs de la figure 3D-14 (ligne tratillée : tendance continue; ligne continue : moyennes annuelles normalisées).	3-325
3D-23	Idem figure 3D-22 sauf qu'elle représente l'intersection, la tendance à long terme et le cycle à long terme du $SO_4^=$ dans l'air dans la région E.L.A.	3-326
3D-24	Idem figure 3D-23 pour le SO_2 dans l'air.	3-327
3D-25	Idem figure 3D-23 pour les NO_3^- dans l'air.	3-328
3D-26	Tendance à long terme de la médiane mensuelle des concentrations atmosphériques de SO_2 à Kejimkujik normalisée d'après 1980 pour les quatre secteurs de la figure 3D-14 (ligne traitillée : tendance continue; ligne continue : moyennes annuelles normalisées).	3-329
3D-27	Idem figure 3D-26 pour le SO_2 dans l'air.	3-330
3D-28	Idem figure 3D-26 pour tous les NO_3^- dans l'air.	3-331

ANNEXE 3D

VARIATION EN FONCTION DU TEMPS DES CONCENTRATIONS DE SULFATES ET DE NITRATES DANS L'AIR ET DANS LES PRÉCIPITATIONS À CINQ SITES DE MESURE DE L'EST DU CANADA

Introduction

L'étude des variations temporelles exige de nombreuses années d'échantillonnage ininterrompues et le moins de changements possibles dans les méthodes d'échantillonnage adoptées. Au Canada, seuls les stations qui faisaient partie du Réseau de surveillance de l'air et des précipitations (APN) et qui font maintenant partie du Réseau canadien de surveillance de l'air et des précipitations (CAPMoN) répondent à peu de chose près à cette exigence. Seulement cinq sites ont été l'objet d'échantillonnage sur une assez long période (sept ans ou plus) pour être considérés. Ce sont : l'Experimental Lakes Area (E.L.A.), en Ontario; Chalk River, en Ontario; Algoma, en Ontario, la forêt Montmorency, au Québec; et Kejimkujik, en Nouvelle-Écosse. Il est à noter que certains changements importants ont été apportés dans les méthodes d'échantillonnage au cours de l'existence de ces sites de mesures. Ces derniers seront exposés brièvement dans la section qui suit.

Une façon générale et classique d'étudier l'évolution d'une variable en fonction du temps est de considérer cette variable comme la somme d'une partie déterministe et d'une partie stochastique. La partie déterministe est constituée de la somme des composantes cycliques annuelles (c'est-à-dire les variations cycliques dont la période est inférieure à un an), des composantes cycliques à long terme (soit les variations cycliques dont la période est supérieure à un an) et des tendances à long terme. Habituellement, on suppose que la partie stochastique est produite aléatoirement à partir d'une distribution normale ayant comme moyenne zéro et un écart-type constant. De plus, les valeurs de la composante stochastique sont considérées comme indépendantes. Dans le cadre de la présente étude, un modèle additif de ce genre a été ajusté à l'aide de la méthode des moindres carrés aux transformations logarithmiques des concentrations. Nous ne discuterons que de la variation temporelle des concentrations de $SO_4^=$ et de NO_3^- dans les précipitations ainsi que des concentrations atmosphériques de $SO_4^=$, de SO_2 et de NO_3^- totaux. Dans le cas de Kejimkujik, situé près de l'océan atlantique, nous présenterons les résultats obtenus pour les sulfates en excès (c'est-à-dire les valeurs observées du $SO_4^=$ corrigées pour la contribution des sels marins à l'aide des valeurs de Na^+ et d'un rapport de masse $SO_4^=/Na^+$ de 0,25). Le modèle décrit dans le paragraphe précédent a été ajusté aux valeurs hebdomadaires moyennes et à la médiane mensuelle et non pas aux valeurs quotidiennes, parce que la composante stochastique consistait en des valeurs quotidiennes fortement autocorrélées. Dans le cas des concentrations dans les précipitations, nous avons utilisé la moyenne hebdomadaire pondérée en fonction des précipitations, et dans le cas des concentrations atmosphériques, la médiane

mensuelle a été utilisée. Nous n'avons utilisé que les semaines ou les mois qui comprenaient suffisamment de données.

Historique du réseau

Comme nous l'avons déjà mentionné, depuis l'établissement des sites de surveillance, d'importantes modifications ont été apportées aux méthodes d'échantillonnage et d'analyse chimique; ces modifications pourraient influer sur les résultats obtenus dans l'analyse. Il est donc important d'en tenir compte dans l'interprétation des résultats. Nous ne décrirons brièvement que les changements pertinents.

Échantillonnage des précipitations

Sous le réseau APN, l'échantillonnage des précipitations était effectué quotidiennement à l'aide d'un collecteur Sangamo conçu pour les précipitations humides seulement (voir Barrie et al, 1980). Les échantillons étaient recueillis dans un contenant de plastique à 0800 HSL (heure sidérale locale). Outre le collecteur utilisé pour l'analyse chimique des précipitations, deux appareils standard canadiens de mesure de la quantité de précipitations ont été utilisés : un pluviomètre et un nivomètre munis d'un écran Nipher. Toutes les deux semaines, les échantillons de précipitations étaient expédiés à Burlington (Ontario) au Laboratoire national d'analyse de la qualité des eaux d'Environnement Canada. Le $SO_4^=$ et le NO_3^- ont été analysés à l'aide de techniques automatisées de réduction au bleu de méthyl-thymol et au cadmium, respectivement. Les échantillons contenant peu de précipitations n'ont pas été analysés.

Au milieu de l'année 1983, tous les sites du réseau APN, à l'exception d'Algoma, ont été intégrés au réseau CAPMoN. Algoma a été ajouté à ce réseau en janvier 1985. Le réseau CAPMoN utilise un collecteur de précipitations humides de type A-M (Vet et al., 1986). Il diffère du collecteur Sangamo de nombreuses façons. Les différences les plus importantes sont : 1) le couvercle du seau est contrôlé par un nouveau senseur des précipitations; 2) la superficie de collecte du seau est 2,7 fois plus grande que celle du collecteur Sangamo et 3) un sac collecteur en plastique recouvre l'intérieur du seau. Les sacs de plastique sont changés chaque matin à 0800 HSL. Il faut noter que la composition du sac de plastique a été changée deux fois depuis l'établissement du réseau CAPMoN (Vet et al., 1986, 1988a, 1988b et 1989). À partir de l'été 1983, le $SO_4^=$ et le NO_3^- ont été analysés par chromatographie ionique. Les échantillons qui contiennent de faibles quantités de précipitations sont dilués puis analysés.

Échantillonnage de l'air

Pour mesurer les concentrations atmosphériques, on utilise un système d'aspiration qui consiste d'une batterie de filtres à air montés en série, au sommet d'une tour de 10 mètres. Avant décembre 1982, on utilisait un système à deux filtres permettant la détermination des concentrations atmosphériques de $SO_4^=$, de SO_2 et des NO_3^- totaux

(voir Barrie et al., 1980). Les filtres fonctionnaient pendant 24 heures débutant à environ 0800 HSL. Le $SO_4^=$ et tous les NO_3^- étaient analysés par chromatographie ionique, tandis que les concentrations de SO_2 étaient déterminées grâce à la méthode automatisée de Thorin. En décembre 1982, le système à deux filtres a été remplacé par un système à trois filtres qui permet la mesure individuelle des nitrates particulaires et des nitrates gazeux (voir Anlauf et al, 1985). Les techniques d'analyse chimique sont restées les mêmes sauf que la méthode automatisée de Thorin utilisée pour le SO_2 a été remplacée par la chromatographie ionique en janvier 1984.

Modèle statistique

Le modèle général décrit dans l'introduction peut s'énoncer algébriquement comme suit:

$$\text{Log}(C(t)) = C_0 + f^t(t) + f^c(t) + f^s(t) + \epsilon(t)$$

où :

- C(t) est la concentration au temps t;
- C_0 est une constante;
- $f^t(t)$ est la tendance à long terme dont l'approximation peut s'exprimer par un polynôme de faible degré en t comme $c_1^t t + c_2^t t^2 + \ldots$. (Des polynômes allant jusqu'au troisième degré ont été utilisés aux fins de la présente étude.);
- $f^c(t)$ est la composante cyclique que l'on peut exprimer approximativement comme la somme de sinus et de cosinus ayant des périodes supérieures à un an mais inférieures à 6 ans (On a testé jusqu'à deux cycles différents.);
- $f^s(t)$ est la composante cyclique annuelle que l'on peut exprimer comme une somme de sinus et de cosinus ayant des périodes égales ou inférieures à un an (Des cycles ayant des périodes d'un an, de six mois et de quatre mois ont été utilisés.);
- $\epsilon(t)$ est la composante stochastique.

Un sixième terme a été ajouté pour décrire la relation entre la concentration des ions dans les précipitations et la quantité de précipitations. Ce terme s'exprime comme suit : $c^P \text{Log}(P)$, où P est la quantité hebdomadaire totale des précipitations. La relation (1) a été ajustée aux concentrations hebdomadaires moyennes et à la médiane mensuelle à l'aide de la méthode des moindres carrés.

Pour vérifier si les différents termes de la relation (1) étaient statistiquement significatifs, on s'est servi de la technique de régression multiple de Bonferroni et d'un coefficient de confiance de 90 % (voir Miller, 1981). Cette technique suppose que la composante

stochastique est produite aléatoirement à partir d'une distribution normale ayant comme moyenne zéro et un écart-type constant dans le temps. Les valeurs mensuelles de la composante stochastique devraient également être indépendantes. Pour vérifier la normalité des composantes stochastiques, on s'est servi du test de Kolmogorov-Smirnov (voir Hollander et Wolfe, 1973) à un niveau de confiance de 95 %. Pour vérifier leur caractère indépendant, on a calculé les coefficients d'autocorrélation jusqu'à un décalage temporel de 14, et on les a comparé à la valeur limite de $1,96/\sqrt{n}$, où n est le nombre de données (voir Chatfield, 1984).

Résultats

Concentrations dans les précipitations

Comme il a été mentionné dans la section précédente, deux hypothèses sont formulées au sujet des composantes stochastiques : elles ont une distribution normale et leurs valeurs sont indépendantes d'une semaine à l'autre. Le test de Kolmogorov-Smirnov à un niveau de confiance de 95 %, utilisé pour vérifier la normalité, a indiqué que la première hypothèse est rejetée pour la plupart des modèles ajustés. Cependant, la non-normalité des composantes stochastiques est faible et n'influerait pas énormément sur les résultats présentés ici, en raison du grand nombre d'observations disponibles (plus de 248 dans tous les cas). L'hypothèse de l'indépendance entre les composantes stochastiques hebdomadaires n'a pas été rejetée.

Le tableau 3D-1 résume les résultats de l'ajustement du modèle effectué pour les concentrations des sulfates et des nitrates dans les précipitations. La figure 3D-1 présente deux exemples d'ajustements du modèle aux observations dans le cas des sulfates. Les points correspondent aux concentrations hebdomadaires moyennes observées pondérées en fonction des précipitations, et les petits carrés, aux valeurs obtenues grâce aux modèles ajustés. Dans tous les cas, sauf pour le NO_3^-, à la forêt Montmorency, la fraction de la variance totale expliquée par le modèle varie entre 0,15 et 0,34.

Pour tous les emplacements, sauf Algoma en ce qui concerne le NO_3^-, on a constaté une relation significative entre la concentration moyenne hebdomadaire et la hauteur des précipitations. Dans tous les cas significatifs, le logarithme des concentrations moyennes hebdomadaires diminue avec l'accroissement de la valeur du logarithme de la hauteur des précipitations. Pour le $SO_4^=$, le coefficient de relation linéaire entre le Log(C) et le Log(P) a varié entre -0,11 et -0,43. Pour le NO_3^- il s'est situé entre -0,12 et -0,38. "C" était exprimé en mg l^{-1}, et P, en mm.

Dans le cas du $SO_4^=$, on a trouvé des tendances à long terme statistiquement significatives pour tous les emplacements. Les tendances à long terme (c'est-à-dire : $C_0 + F^t(t)$, relation (1)), normalisées par la valeur moyenne calculée pour 1980 ou pour la première année d'observation complète subséquente, sont présentées à la figure 3D-2.

À tous les sites, sauf la forêt Montmorency, il s'est produit une diminution entre 1980-1981 et 1987. Les diminutions les plus importantes, environ 40 %, ont été observées à Chalk River et dans la région de E.L.A., tandis qu'à Kejimkujik et à Algoma, elles ont été d'environ 25 %. En ce qui concerne les NO_3^-, on n'a trouvé de tendance à long terme statistiquement significative qu'à Kejimkujik (figure 3D-3). La concentration de NO_3^- s'est accrue d'environ 40 % à cet emplacement entre 1980 et 1987.

On a constaté des composantes cycliques à long terme ($f^c(t)$) dans la région de E.L.A. ainsi qu'à Algoma pour le $SO_4^=$ et à tous les emplacements sauf à Chalk River pour le NO_3^-. Les périodes des cycles à long terme varient entre 3 ans environ, dans la région de E.L.A., pour les sulfates et environ 5,5 ans, pour les nitrates au même site. Les figures 3D-4 et 3D-5 présentent la combinaison des tendances à long terme et des tendances cycliques pour le $SO_4^=$ et le NO_3^- respectivement. Aucune similitude n'a été constatée dans le cas de la variation temporelle des composantes cycliques à long terme d'un site à l'autre. Pour la même période, les composantes cycliques à long terme peuvent être minimales à certains sites et maximales à d'autres.

On a observé des cycles annuels statistiquement significatifs pour ce qui est des concentrations dans les précipitations à tous les sites (tableau 3D-1). Dans le cas du $SO_4^=$, on a observé des cycles annuels de 12 mois et de 6 mois, sauf à Kejimkujik, où le cycle de 6 mois n'était pas significatif. Pour le NO_3^- les périodes de la composante cyclique annuelle ont varié entre une onde sinusoïdale simple de 12 mois à Chalk River, comportant un maximum en février et un minimum en août, et des combinaisons plus complexes d'ondes sinusoïdales et cosinusoïdales ayant des périodes de 12, de 6 ou de 4 mois.

Concentrations atmosphériques

Pour aucun des ions et pour aucun des sites étudiés, l'application du test de Kolmogorov-Smirnov à un niveau de confiance de 95 % n'a rejeté l'hypothèse selon laquelle les composantes stochastiques ont une distribution normale. De même, l'hypothèse de l'indépendance des valeurs des composantes stochastiques d'un mois à l'autre n'a pas été réfutée, sauf pour le SO_2 à Chalk River et à E.L.A., pour lesquels les coefficients d'autocorrélation avec décalage temporel de 1 ont été respectivement de 0,26 et 0,32. Les résultats présentés relativement à ces deux sites doivent donc être considérés avec circonspection.

Le tableau 3D-2 présente un résumé des résultats du modèle ajusté pour ce qui est des concentrations atmosphériques de $SO_4^=$, de SO_2 et des NO_3^- totaux. Les ajustements aux médianes mensuelles des concentrations des modèles sont illustrés dans les figures 3D-6 et 3D-7, pour la région E.L.A. et Kejimkujik, respectivement.

La proportion plus grande expliquée de la variance totale par le modèle avait trait au SO_2 (71 à 80 %). Cela est dû au fait que, pour le SO_2, une plus grande fraction de la variance

dans les données était reliée à des cycles annuels bien définis, comparativement au $SO_4^=$ et aux NO_3^- totaux.

Tendances à long terme

Dans le cas du $SO_4^=$ particulaire, on a observé des tendances à long terme statistiquement significatives seulement à Chalk River (figure 3D-8). En comparaison, dans le cas du SO_2, ces tendances ont été décelées à tous les sites, sauf à Algoma (figure 3D-9). La figure 3D-6 compare l'amplitude de la diminution observée à E.L.A. dans les tendances à long terme avec celle d'autres composantes. Les tendances à long terme montre une diminution d'environ 70 % entre 1980 et 1987. À Chalk River, la majeure partie de la baisse dans les concentrations de SO_2 a eu lieu entre 1979 et 1983. En 1987, la concentration du SO_2 était environ la moitié de celle de 1980. À Kejimkujik, elle s'est accrue entre 1979 et 1981, a diminué jusqu'en 1986 pour atteindre une valeur égale à 40 % de la concentration de 1980, et a finalement augmenté au cours de la dernière année.

Pour ce qui est des NO_3^- totaux, des tendances à long terme statistiquement significatives n'ont été décelées qu'aux trois sites situés les plus à l'est, soit Chalk River, la forêt Montmorency et Kejimkujik (figure 3D-10). Cependant, il n'y a qu'à la forêt Montmorency que ces tendances indiquaient des valeurs décroissantes avec le temps. Aux deux autres sites, les valeurs montrent des maxima relatifs en 1984 et en 1985, suivis d'une diminution en 1986 et 1987. À la forêt Montmorency, il s'est produit une chute d'environ 40 % entre 1981 et 1987.

Cycles à long terme

Dans le cas du $SO_4^=$ particulaire, des cycles à long terme statistiquement significatifs ont été décelés à tous les sites, sauf à Algoma (figure 3D-11). Leur période a varié entre 3,0 et 4,5 ans environ. L'amplitude de ces cycles était faible (voir figures 3D-6 et 3D-7). Pour le SO_2 gazeux, des composantes cycliques à long terme ayant des périodes de 2,5 ans à 4,5 ans environ ont été observées à toutes les stations, sauf à Chalk River et à la forêt Montmorency (figure 3D-12). Leur amplitude était également faible comme l'illustrent les figures 3D-6 et 3D-7 pour E.L.A et pour Kejimkujik, respectivement. Dans le cas des concentrations atmosphériques des NO_3^- totaux, on a constaté des cycles à long terme à E.L.A. et à Chalk River seulement. Ces cycles avaient des périodes respectives de 3,0 et de 3,5 ans. La figure 3D-13 présente ces tendances à long terme ainsi que les composantes cycliques.

Cycles annuels

Des cycles annuels ont été observés à tous les sites, sauf dans le cas du $SO_4^=$ particulaire, à Chalk River. Dans la plupart des cas, il a fallu des mélanges complexes de sinus et de cosinus ayant des périodes de 12 et de 6 mois pour décrire le cycle

annuel. On a dû utiliser des ondes d'une période de 4 mois à certains emplacements dans le cas des cycles du SO_2 et des NO_3^- totaux.

Tendances dans les concentrations atmosphériques groupées par secteur d'origine

La variation temporelle non aléatoire de la concentration d'une substance à un emplacement est le produit final de l'interaction entre deux facteurs, soit la variation dans les émissions et la variation dans la circulation atmosphérique. Si les changements qui surviennent dans les émissions étaient la seule cause de la variation temporelle, il faudrait s'attendre à un diminution nette de la concentration de soufre entre 1980 et 1985, car les émissions de SO_2 ont diminué dans la majeure partie de l'Amérique du Nord (figure 3.2.42). Cependant, entre 1980 et 1985, on n'a pu déceler de tendances décroissantes à long terme significatives du SO_2 que pour E.L.A., Chalk River et la forêt Montmorency. Cela est probablement dû au bruit important causé par les facteurs météorologiques. L'une des techniques dont on peut se servir pour réduire les effets de la météorologie consiste à utiliser les rétrotrajectoires des parcelles d'air pour classer les concentrations observées selon leur origine et vérifier ensuite l'existence de tendances. Cette technique a été utilisée pour le $SO_4^=$, le SO_2 et les NO_3^- totaux à deux sites: E.L.A. et Kejimkujik.

La figure 3D-14 montre les quatre régions d'origine choisies pour la stratification des sulfates et des nitrates observés à E.L.A. et à Kejimkujik. L'information tirée des rétrotrajectoires a été utilisée pour assigner chaque concentration quotidienne à une région ou à un secteur d'origine particulier. La valeur médiane des concentrations quotidiennes appartenant à un secteur a été calculée pour chaque mois. Ensuite, le modèle décrit par la relation (1) a été ajusté par la méthode des moindres carrés aux valeurs médianes mensuelles de chaque secteur, ce qui a donné quatre modèles différents pour chaque ion et pour chaque site.

Avant de discuter des résultats obtenus grâce aux modèles, il serait utile d'examiner la distribution des données quotidiennes regroupées par secteur. La figure 3D-15 présente des graphiques de boîtes qui correspondent aux concentrations ioniques quotidiennes regroupées par secteur. Les fréquences d'occurence de chaque secteur sont présentées au tableau 3D-4. À E.L.A., les plus fortes concentrations de $SO_4^=$ proviennent principalement de l'est des États-Unis et du sud-est du Canada (secteur IV), et les plus faibles, des secteurs nord-est et nord-ouest (I et III). La valeur médiane du secteur IV était environ deux fois supérieure à celle du secteur I. On a obtenu des résultats semblables pour le SO_2, sauf que, dans le cas du secteur II et du secteur III, la distribution n'était pas différente. Pour ce qui est des NO_3^- totaux, la plupart des concentrations maximales ont été observées dans le secteur sud-ouest (III). Comme pour le $SO_4^=$, les valeurs les plus faibles ont encore été observés dans le secteur nord (I). Dans le secteur sud-ouest (III), la valeur médiane était environ quatre fois supérieure à celle du secteur nord (I). À Kejimkujik, les concentrations de $SO_4^=$ et des NO_3^- totaux ont augmenté du nord vers l'est, puis vers l'ouest et vers le sud-ouest (du secteur I vers le secteur IV). Dans le secteur sud-ouest (IV), la valeur médiane était environ 3,5 fois

plus élevée que celle du secteur nord (I), dans le cas de ces deux ions. Pour le SO_2, les concentrations les plus faibles provenaient de l'est, près de l'océan atlantique (secteur II). Dans le cas des secteurs ouest et sud-ouest (III et IV), les distributions n'étaient pas différentes. En résumé, ces résultats indiquent qu'il existe une relation entre les concentrations ioniques et la région d'origine de l'air. Ils montrent en outre que les concentrations ioniques maximales proviennent principalement de régions ayant des fortes émissions.

Comme dans les cas susmentionnés d'ajustement du modèle, on a effectué des tests pour déterminer si les composantes stochastiques (résiduelles) suivaient une distribution normale et si elles étaient indépendantes. Dans tous les cas, l'hypothèse de normalité n'a pas pu être rejetée après l'application du test de Kolmogorov-Smirnov à un niveau de confiance de 95 %. L'hypothèse de l'indépendance des valeurs d'un mois à l'autre n'a également pas pu être rejetée, dans tous les cas, après l'application du test décrit précédemment.

Un résumé des résultats de l'ajustement du modèle est présenté au tableau 3D-3. Les figures 3D-16 à 3D-21 illustrent l'ajustement entre les valeurs observées et les valeurs modélisées pour les quatre secteurs. À E.L.A. (figures 3D-16 à 3D-18), on n'a décelé aucune tendance à long terme statistiquement significative pour ce qui est du $SO_4^=$ particulaire et des NO_3^- totaux. En revanche, on a constaté l'existence de cycles à long terme dans les secteurs I, II et III pour le $SO_4^=$ et dans les secteurs I, II et IV pour les NO_3^- totaux (figures 3D-23 et 3D-25). Leurs périodes ont varié entre 2,0 et 5,0 ans. On a observé l'existence de cycles annuels dans tous les secteurs, sauf dans le secteur de l'est des États-Unis et du sud-est du Canada (IV), pour le $SO_4^=$. Dans ce dernier cas, on n'a trouvé aucune composante statistiquement significative pour ce qui est du $SO_4^=$ particulaire. En ce qui concerne E.L.A., une tendance à long terme significative des concentrations de SO_2 a été décelée pour tous les secteurs. La figure 3D-22 montre les termes $C_0 + f^t(t)$ de la relation (1) normalisés selon la valeur moyenne de 1980. Dans le cas des secteurs sud-ouest, nord-ouest et sud-est (II, III et IV), la médiane mensuelle a subi une hausse de janvier 1979 jusqu'à la fin de 1981 et le début de 1982, puis elle a diminué. Les tendances à long terme observées dans les secteurs sud-est et nord-ouest (II et III) sont essentiellement identiques. Pour le secteur de l'est des États-Unis et du sud-est du Canada (IV) ainsi que pour le secteur nord-est (I), la tendance à long terme de la médiane mensuelle indique une diminution d'environ 70 % entre 1980 et 1987. Quant aux secteurs sud-ouest et nord-ouest (III et II, respectivement), les concentrations ont été environ 60 % plus faibles en 1987 qu'en 1980. On a décelé un cycle à long terme ayant une période égale à 4,5 ans pour le secteur nord-est seulement (I) (figure 3D-24).

À Kejimkujik (figures 3D-19 à 3D-21), on a décelé des tendances à long terme pour chaque ion dans certains secteurs. Les figures 3D-26 à 3D-28 présentent les tendances à long terme statistiquement significatives. Pour ce qui est du $SO_4^=$ particulaire, des tendances à long terme ont été décelées pour tous les secteurs à l'exception du secteur sud-ouest (IV). Il est intéressant de noter qu'aucune tendance à long terme n'a été

constatée dans le cas de l'air provenant du secteur sud-ouest (IV), qui constitue la région où les émissions sont les plus fortes. En ce qui concerne le SO_2, on a observé une variation à long terme significative pour les quatre secteurs. La tendance à long terme ayant la plus grande amplitude avait trait au secteur situé près de l'océan atlantique (II). Il est à noter que ce secteur comprend Halifax, où les émissions de SO_2 provenant de deux centrales thermiques sont passées de 24 713 à 5 521 tonnes par année entre 1980 et 1985 (J. Underwood, communication personnelle). Quant aux secteurs ouest et sud-ouest (III et IV), la médiane mensuelle a diminué progressivement, d'environ 60 %, entre janvier 1979 et décembre 1987. Pour ce qui est du secteur nord (I), la tendance à long terme indique également une baisse entre 1979 et 1986, puis une faible hausse en 1987. En 1986, la concentration était d'environ 60 % inférieure à celle de 1980. Dans le cas des NO_3^- totaux (figure 3D-28), des tendances à long terme significatives ont été observées pour les secteurs nord et ouest (I et III) seulement. Dans les deux cas, la tendance à long terme indiquait que la médiane mensuelle a augmenté puis a diminué au cours des dernières années.

En résumé, les composantes non aléatoires des séries chronologiques ont montré différentes configurations selon le secteur considéré. À E.L.A., on n'a observé de tendances à long terme significatives que pour le SO_2. Ces dernières indiquaient un diminution générale de la médiane mensuelle des concentrations. La même configuration globale a été observée à Kejimkujik pour le SO_2. À ce dernier site, on a décelé des tendances à long terme dans le cas des secteurs I, II et III. En ce qui concerne les NO_3^- totaux, seulement les secteurs I et III ont affiché des tendances à long terme.

Discussion

Puisque les données d'observation disponibles ne couvraient qu'une période variant entre 7 et 9 ans, les résultats présentés dans la section précédente ne sont que préliminaires et ils doivent être interprétés avec circonspection.

Comme il a déjà été mentionné, la variation temporelle déterminée des concentrations ioniques de sulfates et de l'azote à un site est le produit final de l'interaction entre deux principaux facteurs, soit 1) la variation dans les sources d'émissions de SO_x et de NO_x et 2) la variabilité météorologique. Les changements apportés dans les méthodes d'échantillonnage et d'analyse utilisées pour la détermination des concentrations dans les précipitations et dans l'air constituent un troisième facteur qui pourrait influer sur les résultats obtenus pour les tendances à long terme.

Dans le cas des précipitations, le seul effet perceptible des changements apportés dans les méthodes d'échantillonnage et d'analyse a été l'augmentation du nombre de valeurs de concentrations ioniques déterminées à partir d'échantillons de faible volume. Les échantillons de faible volume qui manquent avant le milieu de 1983 auraient pour effet d'introduire un faible biais systématique et une plus grande incertitude dans les valeurs de la moyenne hebdomadaire pondérée en fonction des précipitations (Sirois, 1990).

L'ordre de grandeur du biais et des incertitudes est fonction du nombre d'échantillons et du volume total de précipitations manquants. Puisque le pourcentage des épisodes manquants serait plus grand que le pourcentage des quantités de précipitations manquantes, l'estimation de la moyenne mensuelle pondérée par les précipitations devrait comporter un biais systématique négatif (Sirois, 1990). Par conséquent, cet effet aurait tendance à fausser toute diminution de la concentration moyenne hebdomadaire qui aurait pu se produire suite au changement de méthodes. Cet effet devrait toutefois être faible, car, dans la majorité des cas, le biais devrait être inférieur à 5 %.

Lorsqu'on considère la variation temporelle de la concentration atmosphérique quotidienne des ions, on ne décèle aucune rupture importante dans les séries chronologiques associées au changement apporté dans les méthodes d'échantillonnage en décembre 1982. Ce changement ne devrait donc pas avoir un effet significatif sur les résultats présentés dans la section précédente.

En résumé, il faudrait s'attendre à ce que la partie déterministe de la variation temporelle des concentrations ioniques observées dans l'air et dans les précipitations soit liée principalement à la variation des émissions et des facteurs météorologiques. Cependant, il est difficile de distinguer l'importance relative de ces deux effets. La variation des tendances à long terme à un emplacement serait régie par la variation à long terme dans les émissions et dans la circulation de l'air. Puisque la variation temporelle des émissions dépend de la région, l'action de ces deux facteurs ne serait pas indépendante. Par exemple, un réduction dans les émissions peut être compensée par un décalage dans la circulation atmosphérique générale, lequel peut augmenter la fréquence des jours au cours desquels l'air provient de régions de fortes émissions.

Comme nous l'avons vu précédemment, des décroissances significatives des concentrations de sulfates dans les précipitations ont pu être décelées entre 1980 et 1985 à E.L.A., Algoma, Chalk River et Kejimkujik, ainsi que des diminutions des concentrations atmosphériques de SO_2 à Chalk River, à E.L.A et à la forêt Montmorency. Il est intéressant de noter que la concentration atmosphérique du SO_2, qui est sensible aux sources situées près des sites de surveillance, est celle qui reflète le plus l'accroissement global des émissions de SO_x. Il faut en outre noter que, dans le cas de la concentration du $SO_4^=$ dans les précipitations, une diminution semblable dans la concentration moyenne saisonnière pondérée en fonction des précipitations a été décelée à Dorset (Ontario) (voir annexe 3F), site situé près de Chalk River. En ce qui concerne les nitrates et en raison de la complexité de la distribution spatiale des émissions de NO_x (voir figure 3.2.43), il est difficile de relier ces changements aux tendances à long terme significatives observées pour les NO_3^- totaux dans l'air, à Chalk River, à la forêt Montmorency et à Kejimkujik. Bref, bien que des tendances à long terme aient été observées dans certains cas, il est difficile de les relier à la variation des émissions en raison du bruit important causé par la variabilité météorologique.

Conclusion

Une étude de la variation temporelle des concentrations moyennes mensuelles de $SO_4^=$ et des NO_3^- dans les précipitations ainsi que du $SO_4^=$, du SO_2 et des NO_3^- totaux dans l'air est présentée dans le cas de 5 sites ruraux de l'est du Canada, pour les années 1979 à 1987. On a utilisé les concentrations moyennes hebdomadaires pondérées par les précipitations et la médiane mensuelle des concentrations pour les concentrations ioniques dans les précipitations et dans l'air, respectivement. Des modèles qui supposent que les variations temporelles sont la somme d'une tendance à long terme, de cycles à long terme, de cycles annuels et d'un terme aléatoire, ont été ajustés à l'aide de la méthode des moindres carrés à la transformation logarithmique de la moyenne hebdomadaire et de la médiane mensuelle des concentrations. Dans le cas des concentrations ioniques dans les précipitations, un cinquième terme qui décrit la relation entre la concentration et la quantité de précipitations a été ajouté.

Voici les principaux résultats de cette étude.

- On a trouvé des relations statistiquement significatives entre les concentrations ioniques hebdomadaires moyennes dans les précipitations et la hauteur des précipitations à tous les sites, sauf à Algoma, dans le cas du NO_3^-.

- Pour le $SO_4^=$ dans les précipitations, les concentrations moyennes hebdomadaires ont diminué de 25 à 40 % avec le temps à E.L.A., à Algoma, à Chalk River et à Kejimkujik entre 1980 et 1987.

- On a décelé des tendances à long terme dans la médiane mensuelle des concentrations ioniques atmosphériques à Chalk River pour le $SO_4^=$;à Chalk River, à Kejimkujik et à la forêt Montmorency pour les NO_3^- totaux; et à toutes les stations, sauf Algoma, pour le SO_2. La transformation logarithmique de la médiane mensuelle des teneurs en SO_2 a subi une chute avec le temps à E.L.A, à Algoma et à Chalk River.

- Des cycles à long terme significatifs ont été observés pour la plupart des ions et des sites.

- Des cycles annuels significatifs ont été décelés pour tous les ions et tous les sites, sauf à Chalk River dans le cas des concentrations atmosphériques de $SO_4^=$.

- Lorsque l'on s'est servi de rétrotrajectoires pour classer les échantillons quotidiens par région ou par secteur d'origine, on a observé des tendances à long terme significatives seulement pour le SO_2 à E.L.A. De plus, dans cette même région, et pour tous les secteurs, la composante à long terme de la médiane mensuelle des concentrations de SO_2 a diminué par un facteur de 3 à 4 entre janvier 1982 et décembre 1987.

- À Kejimkujik, on a décelé des tendances à long terme pour tous les secteurs et les ions, sauf pour le secteur sud-ouest (IV) dans la cas du $SO_4^=$ particulaire et pour le secteur situé près de l'Atlantique - Nouvelle-Écosse et celui du sud-ouest (II et IV) dans le cas des NO_3^- totaux. Pour tous les secteurs, la composante à long terme de la médiane mensuelle des concentrations de SO_2 a indiqué une décroissance par un facteur variant entre 2 et 10, entre janvier 1981 et décembre 1987. La diminution maximale a été observée dans l'air relativement propre provenant du secteur de l'Atlantique - Nouvelle-Écosse (II), et la plus faible diminution, dans l'air provenant du secteur du sud-ouest (IV), qui est relativement pollué.

Deux faits importants ressortent de la présente étude. Premièrement, il est nécessaire d'utiliser des modèles plus complexes que les modèles présentant une simple tendance linéaire à long terme et un cycle annuel pour décrire la variation temporelle des concentrations ioniques dans l'air et dans les précipitations. Deuxièmement, bien que des variations à long terme peuvent être décelées, il est difficile de les relier à la variation temporelle des émissions, qui est de l'ordre de 18 à 30 %, en raison de nombreux facteurs, notamment la variabilité météorologique, la longueur plutôt courte de la période d'observation et les changement apportées aux méthodes d'échantillonnage.

Tableau 3D-1

Résumé des résultats d'analyse des séries chronologiques des concentrations atmosphériques de $SO_4^=$ et de NO_3^- à 5 sites ruraux de l'est du Canada.

N représente le nombre de données utilisé, et R^2, la fraction de la variance totale expliquée par le modèle. "O" indique que cette composante est présente dans le modèle, et "N", qu'elle est absente.

ION	Station	N	R^2	HAUTEUR DES PRÉCIPITATIONS	TENDANCE À LONG TERM	CYCLE À LONG TERM	CYCLE ANNUEL
$SO_4^=$	E.L.A.	318	.34	O	O	O	O
	ALGOMA	302	.19	O	O	O	O
	CHALK RIVER	363	.34	O	O	N	O
	MONTMORENCY	257	.27	O	O	N	O
	KEJIMKUJIK	364	.31	O	O	N	O
SO_2	E.L.A.	269	.19	O	N	O	O
	ALGOMA	291	.15	N	N	O	O
	CHALK RIVER	325	.17	O	N	N	O
	MONTMORENCY	248	.06	O	N	O	O
	KEJIMKUJIK	347	.20	O	O	N	O

Tableau 3D-2

Résumé des résultats d'analyse des séries chronologiques des concentrations atmosphériques de $SO_4^=$, de SO_2 et de NO_3^- à 5 sites ruraux de l'est du Canada.

N représente le nombre de données utilisé, et R^2, la fraction de la variance totale expliquée par le modèle. "O" indique que cette composante est présente dans le modèle, et "N", qu'elle est absente.

ION	STATION	N	R^2	TENDANCE À LONG TERM	CYCLE À LONG TERM	CYCLE ANNUEL
$SO_4^=$	E.L.A.	103	.52	N	O	O
	ALGOMA	84	.17	N	N	O
	CHALK RIVER	105	.27	O	O	N
	MONTMORENCY	80	.35	N	O	O
	KEJIMKUJIK	98	.35	N	O	O
SO_2	E.L.A.	79	.71	O	O	O
	ALGOMA	79	.71	N	O	O
	CHALK RIVER	104	.80	O	N	O
	MONTMORENCY	65	.77	O	N	O
	KEJIMKUJIK	83	.78	O	O	O
Tous les NO_3^-	E.L.A.	102	.37	N	O	O
	ALGOMA	83	.12	N	N	O
	CHALK RIVER	103	.40	O	O	O
	MONTMORENCY	76	.19	O	N	O
	KEJIMKUJIK	98	.24	O	N	O

Tableau 3D-3

Résumé des résultats d'analyse des séries chronologiques des concentrations atmosphériques de $SO_4^=$, de SO_2 et de NO_3^- observées à E.L.A. et à Kejimkujik pour quatre différents secteurs d'origine.

N représente le nombre de données utilisé, et R^2, la fraction de la variance totale expliquée par le modèle. "O" indique que cette composante est présente dans le modèle, et "N", qu'elle est absente.

ION	SECTEUR	N	R^2	TENDANCE À LONG TERM	CYCLE À LONG TERM	CYCLE ANNUEL
E.L.A.						
$SO_4^=$	I	96	.61	N	O	O
	II	103	.35	N	O	O
	III	98	.47	N	O	O
	IV	100	.00	N	N	N
SO_2	I	68	.66	O	O	O
	II	82	.62	O	N	O
	III	72	.70	O	N	O
	IV	72	.31	O	N	O
Tous les NO_3^-	I	98	.56	N	O	O
	II	96	.56	N	O	O
	III	93	.39	N	N	O
	IV	98	.21	N	O	O
KEJIMKUJIK						
$SO_4^=$	I	96	.37	O	N	O
	II	84	.11	O	O	N
	III	97	.20	O	N	O
	IV	98	.38	N	O	O
SO_2	I	82	.66	O	O	O
	II	56	.81	O	O	O
	III	84	.63	O	O	O
	IV	82	.55	O	O	O
Tous les NO_3^-	I	97	.24	O	O	O
	II	82	.00	N	N	N
	III	97	.20	O	N	O
	IV	97	.15	N	O	O

Tableau 3D-4

Fréquence d'occurence des quatre secteurs définis dans la figure 3D-14 pour les concentrations atmosphériques quotidiennes de $SO_4^=$, de SO_2 et des NO_3^- totaux à E.L.A. et Kejimkujik.

	E.L.A.			KEJIMKUJIK		
SECTEUR	$SO_4^=$	SO_2	Tous les NO_3^-	$SO_4^=$	SO_2	Tous les NO_3^-
I	25.7	24.6	60.6	32.9	32.2	38.6
II	37.0	38.3	15.5	14.9	14.8	14.7
III	23.8	24.7	11.8	27.6	28.1	20.5
IV	13.5	12.4	12.1	24.6	24.8	26.2

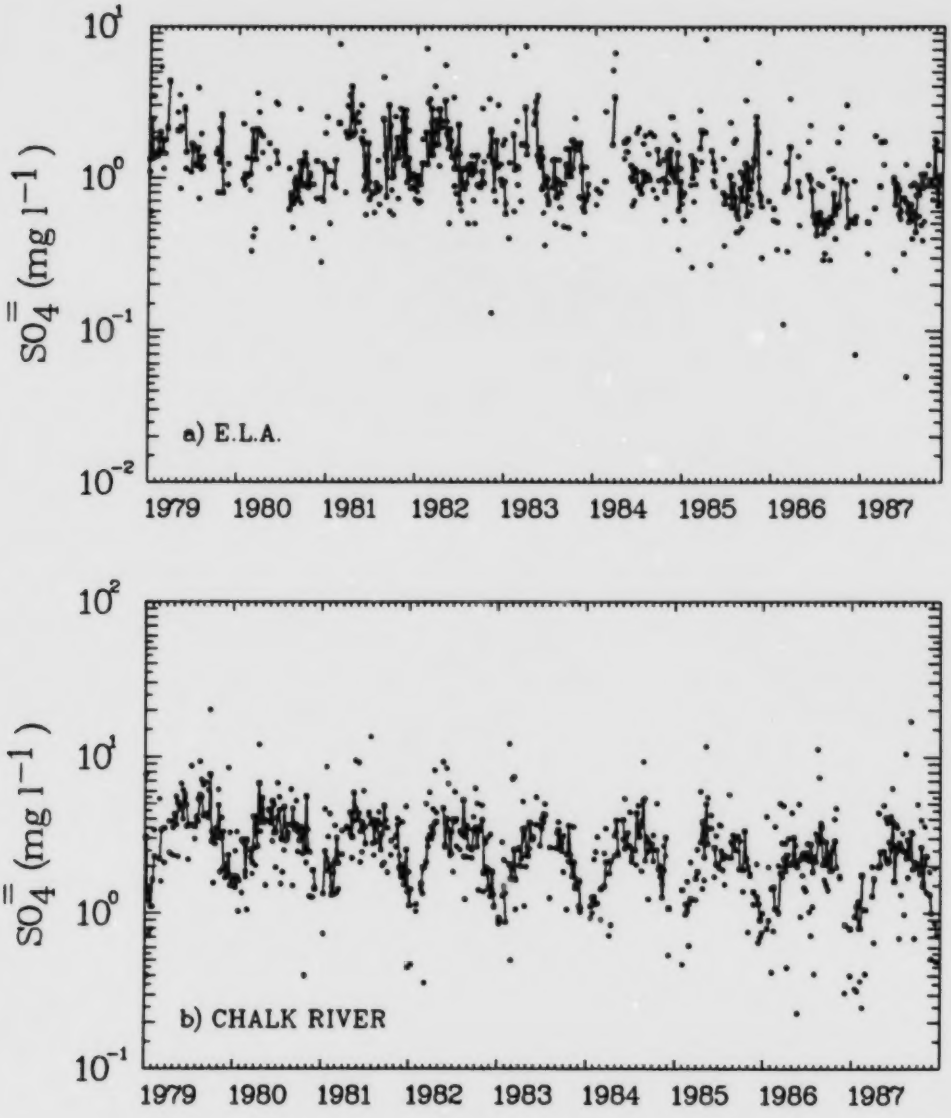


Figure 3D-1 Variation temporelle des concentrations moyennes mensuelles pondérées en fonction des précipitations du $SO_4^{=}$ dans les précipitations dans la région E.L.A. (Experimental Lakes Area) (a) et à Chalk River (b). Les points et les carrés représentent respectivement les valeurs observées et les valeurs modélisées.

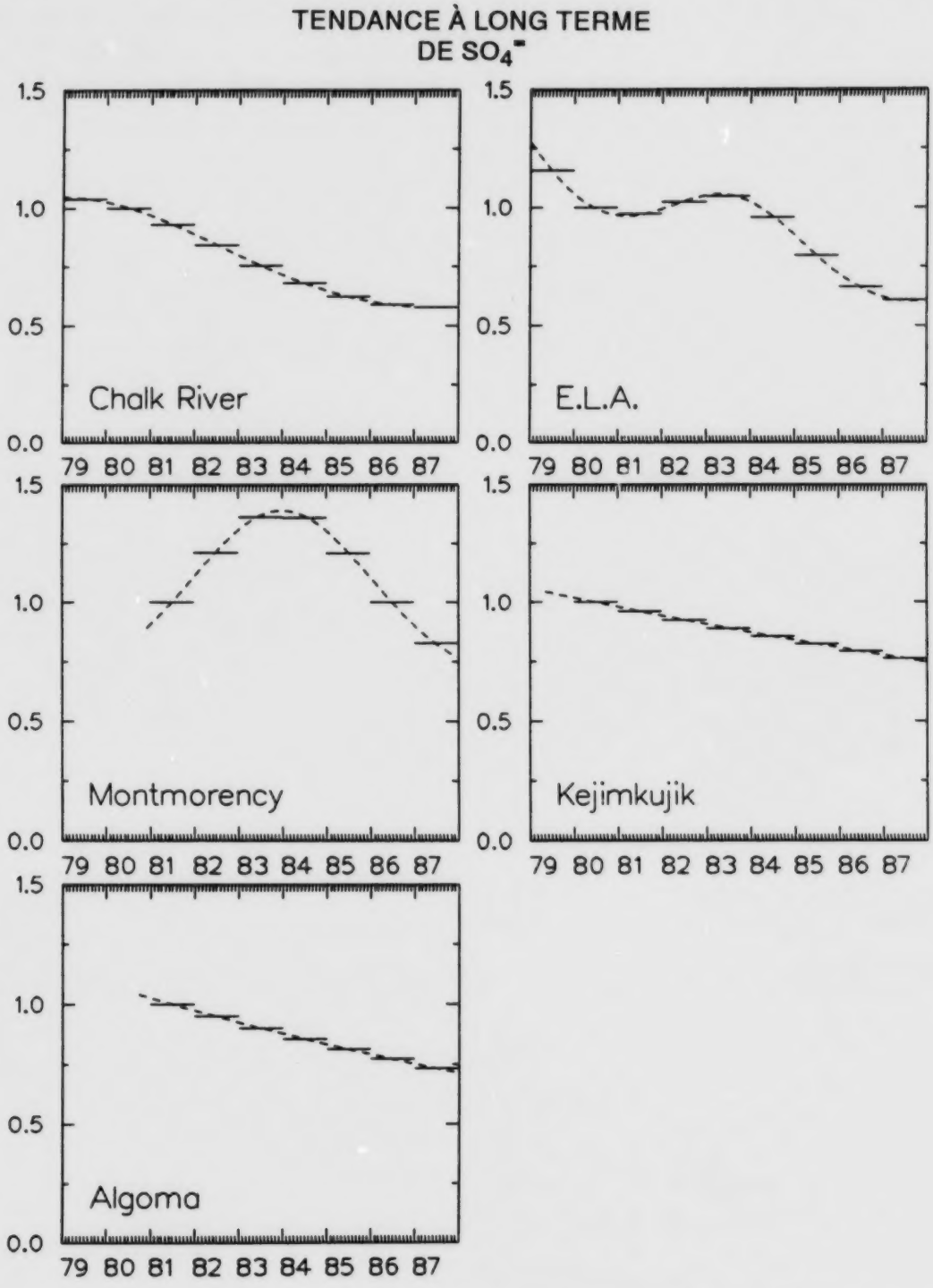


Figure 3D-2 Tendance à long terme ($C_0 + f^t(t)$) des concentrations de $SO_4^=$ dans les précipitations normalisées d'après 1980 (première année complète d'inventaire) (ligne traitillée : tendance continue; lignes continues : valeurs annuelles normalisées). Seuls les emplacements dont les tendances sont statistiquement significatives sont montrés.

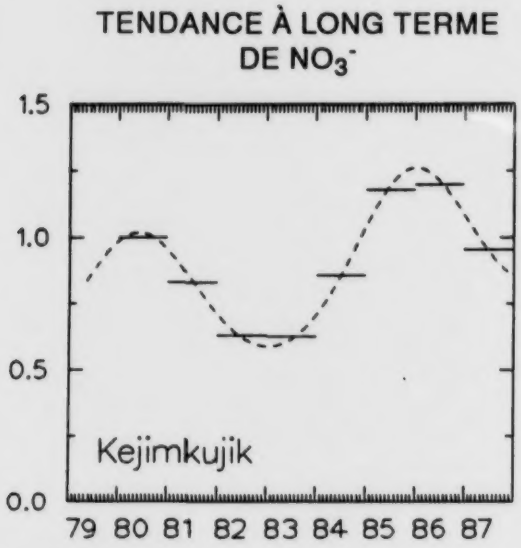


Figure 3D-3 Idem figure 3D-2 pour le NO_3^- dans les précipitations.

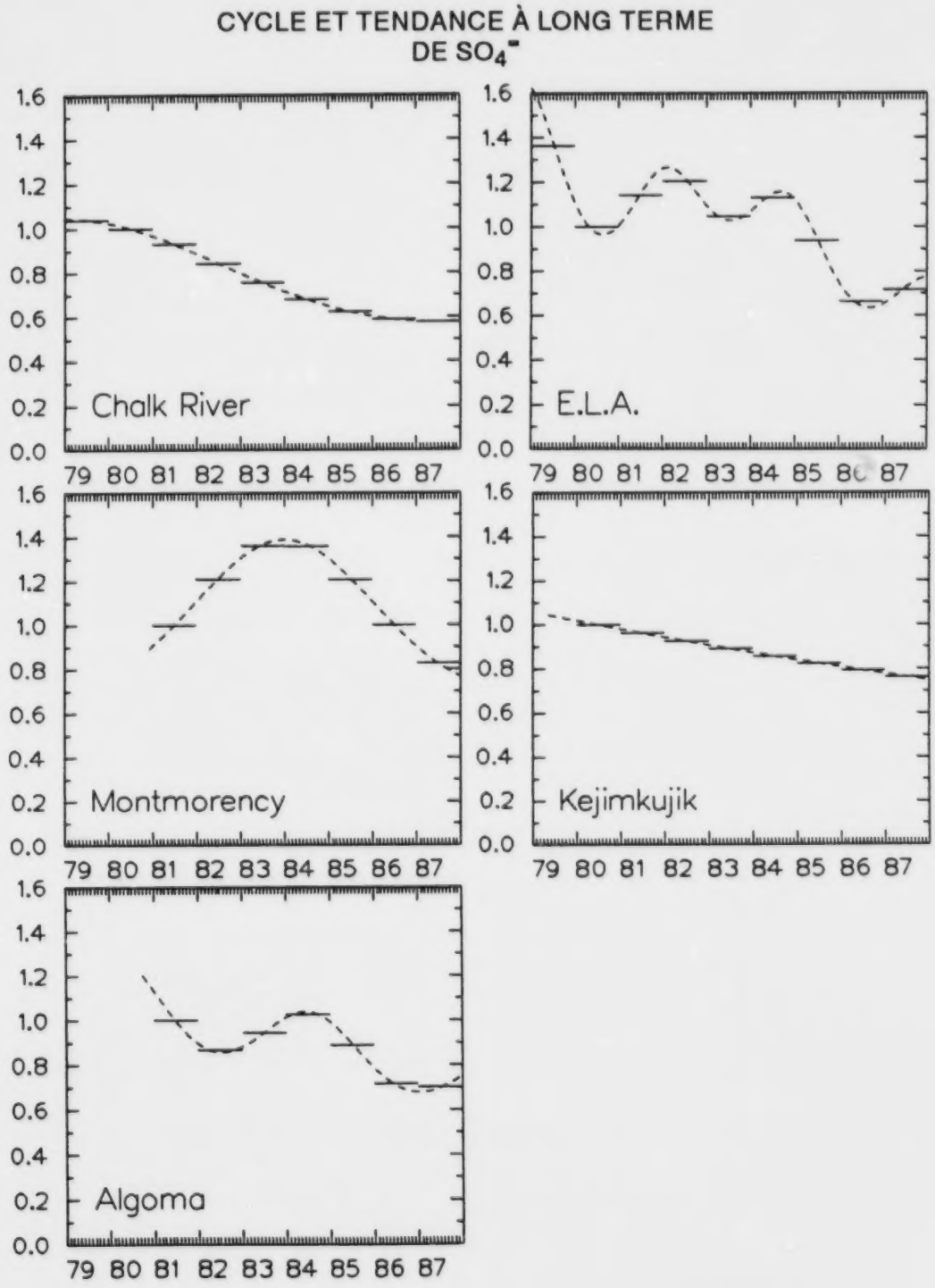


Figure 3D-4 Tendance à long terme et cycle à long terme ($C_0 + f^t(t) + f^c(t)$) des concentrations de $SO_4^=$ dans les précipitations normalisées d'après 1980 (première année complète d'inventaire) (ligne traitillée : tendance continue; lignes continues : valeurs annuelles normalisées). Seuls les emplacements dont les tendances sont statistiquement significatives sont montrés.

CYCLE ET TENDANCE À LONG TERME
DE NO_3^-

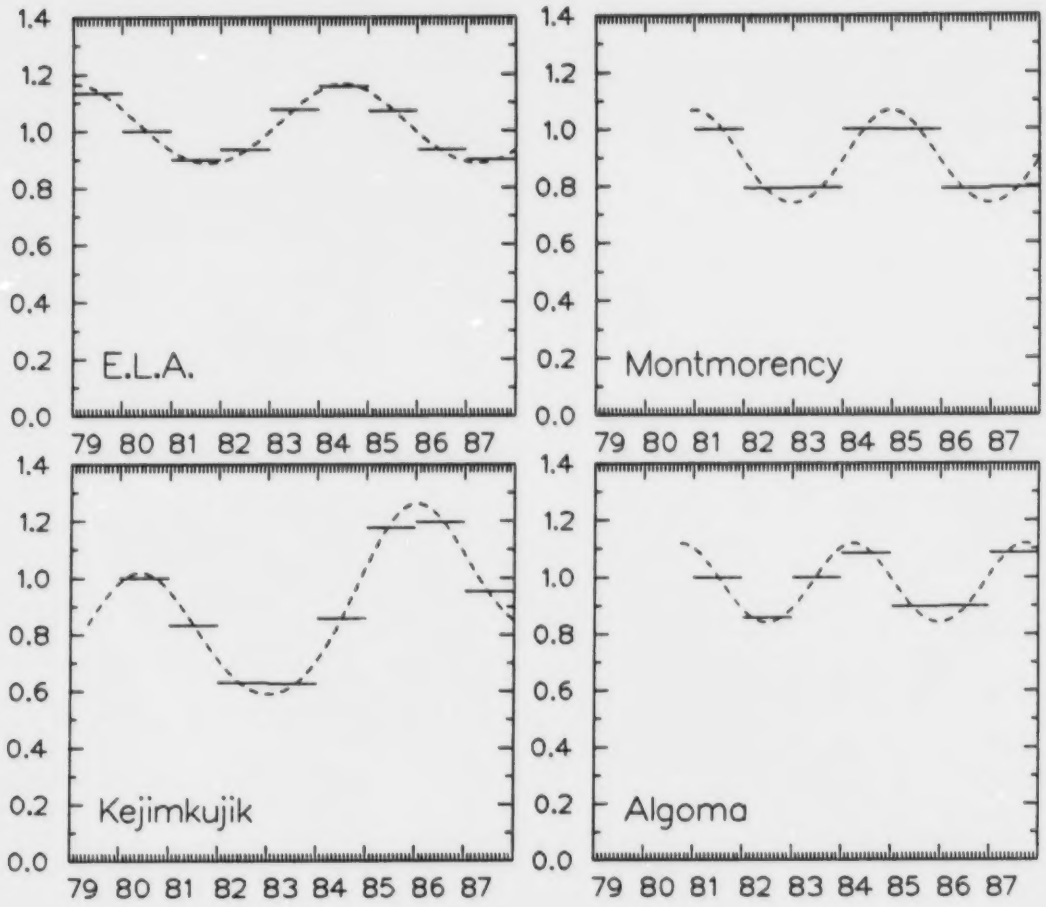


Figure 3D-5 Idem figure 3D-4 pour le NO_3^- dans les précipitations.

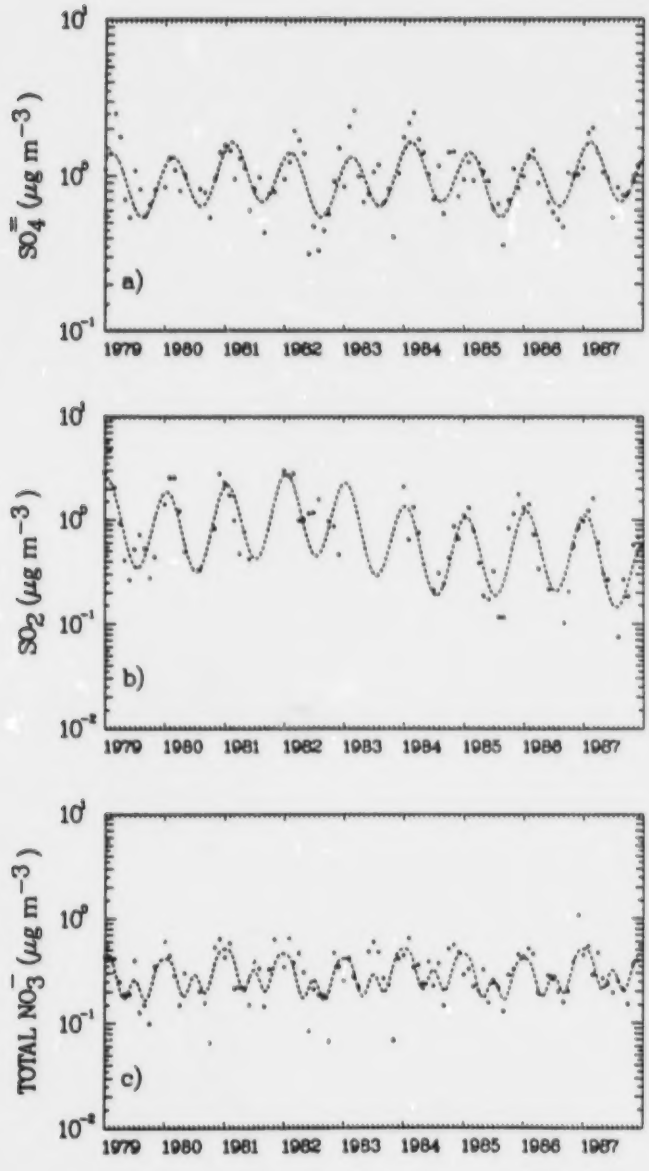


Figure 3D-6 Variation temporelle de la médiane mensuelle des concentrations atmosphériques de $SO_4^{=}$ (a), de SO_2 (b), et de tous les NO_3 (c) pour la région E.L.A. (ligne traitillée : valeurs modélisées; lignes continues : valeurs observées).

KEJIMKUJIK

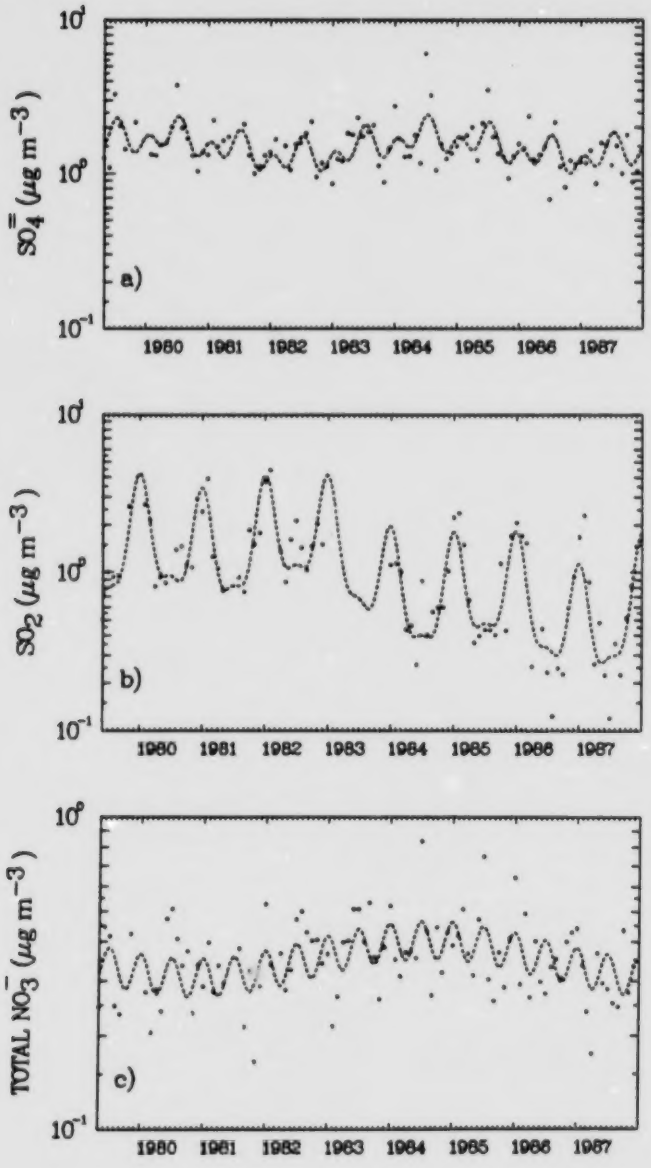


Figure 3D-7 Idem figure 3D-6 pour Kejimkujik.

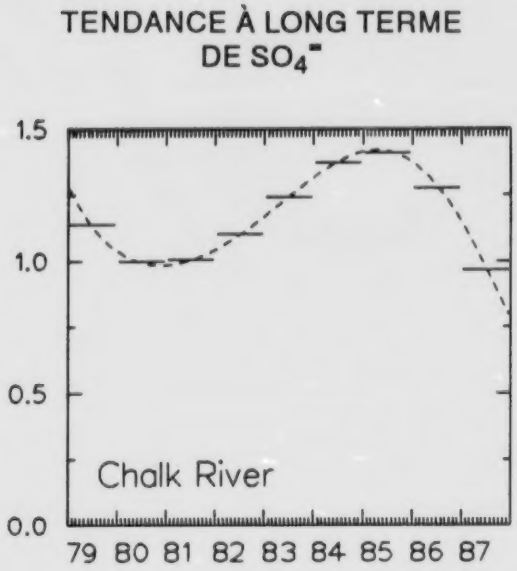


Figure 3D-8 Idem figure 3D-2, mais pour les médianes mensuelles des concentrations atmosphériques de $SO_4^=$.

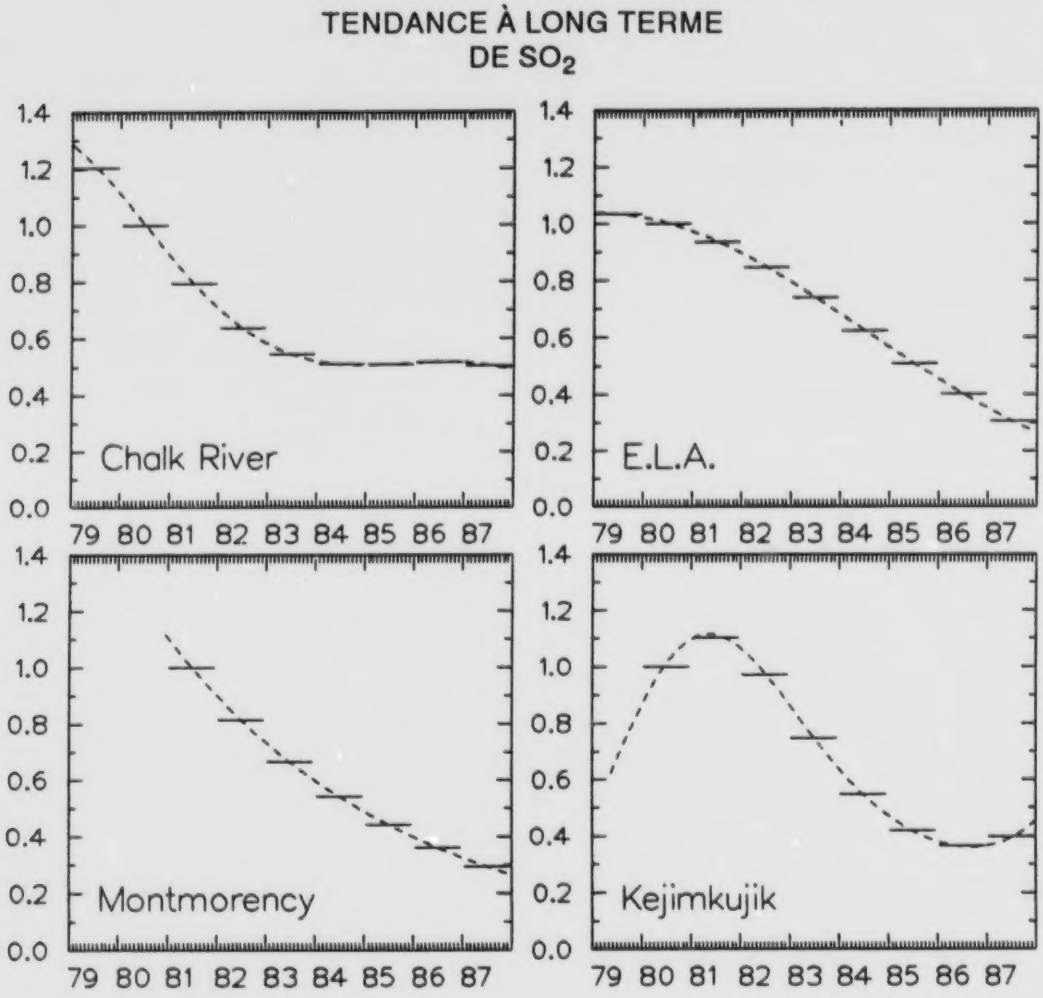


Figure 3D-9 Idem figure 3D-8 pour le SO_2 dans l'air.

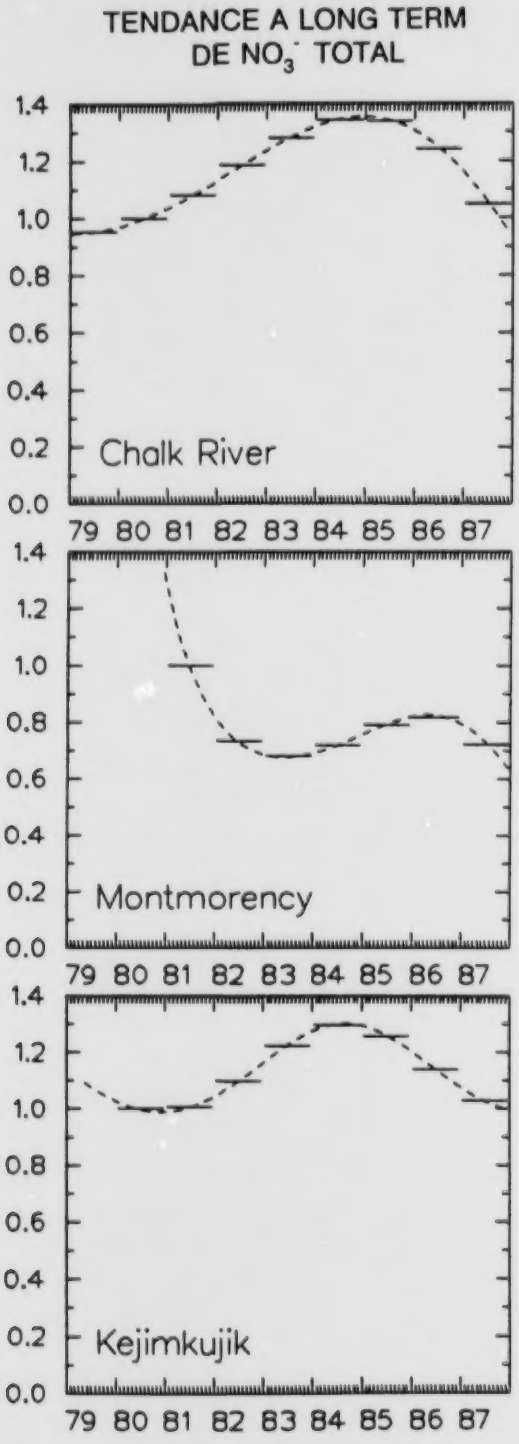


Figure 3D-10 Idem figure 3D-8 pour tous les NO_3^- dans l'air.

CYCLE ET TENDANCE À LONG TERME
DE $SO_4^=$

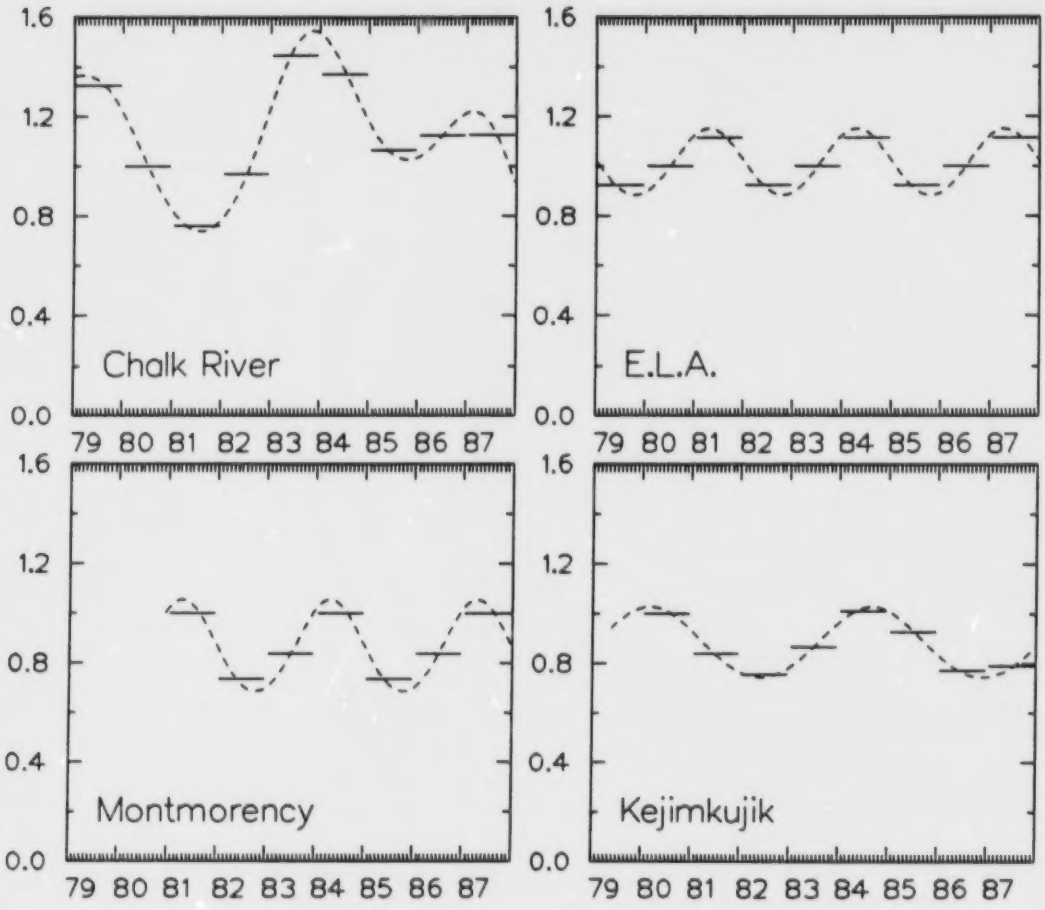


Figure 3D-11 Idem figure 3D-2 pour les médianes mensuelles des concentrations atmosphériques de $SO_4^=$.

CYCLE ET TENDANCE À LONG TERME
DE SO_2

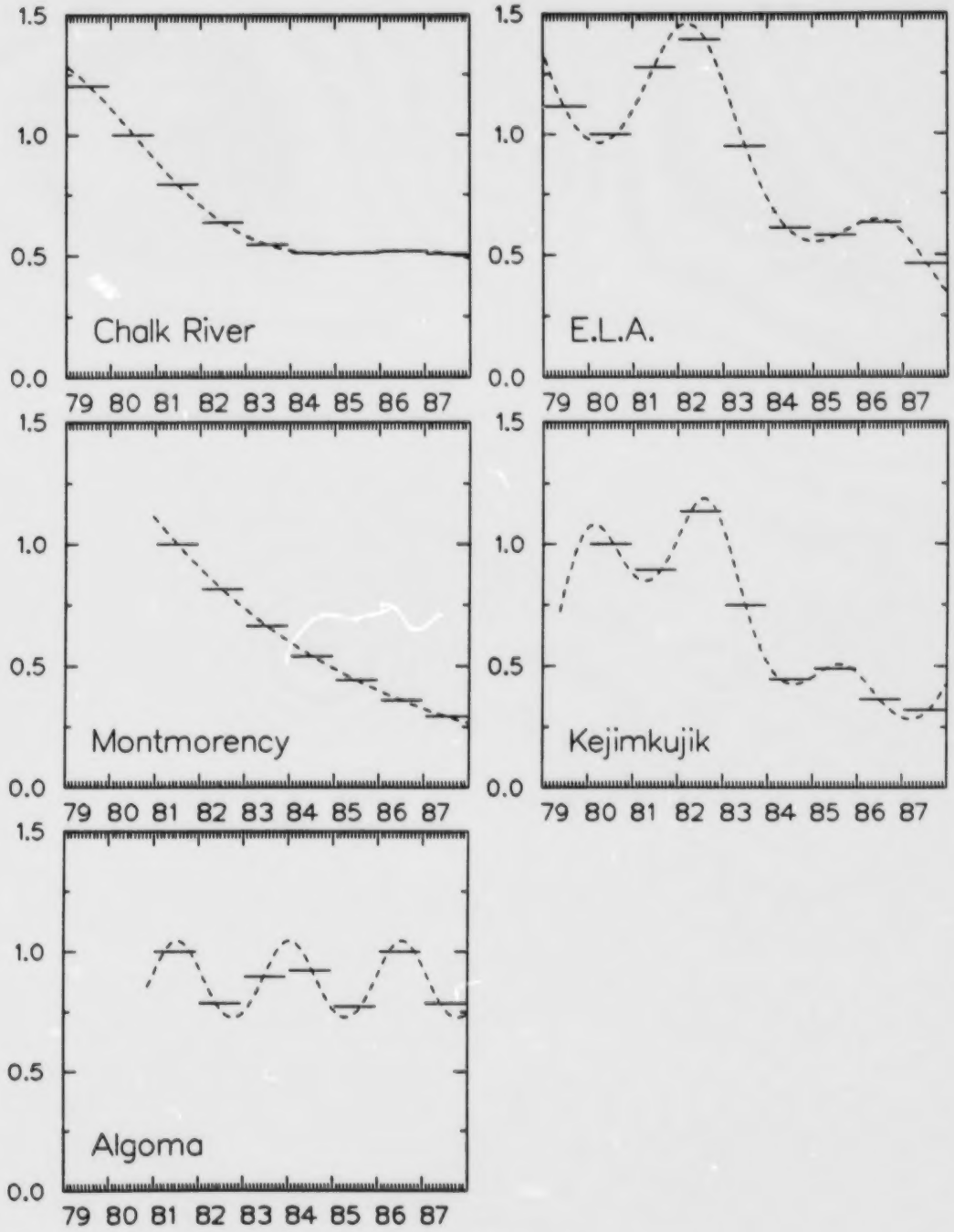


Figure 3D-12 Idem figure 3D-11 pour le SO_2 dans l'air.

CYCLE ET TENDANCE À LONG TERME DE NO_3^-

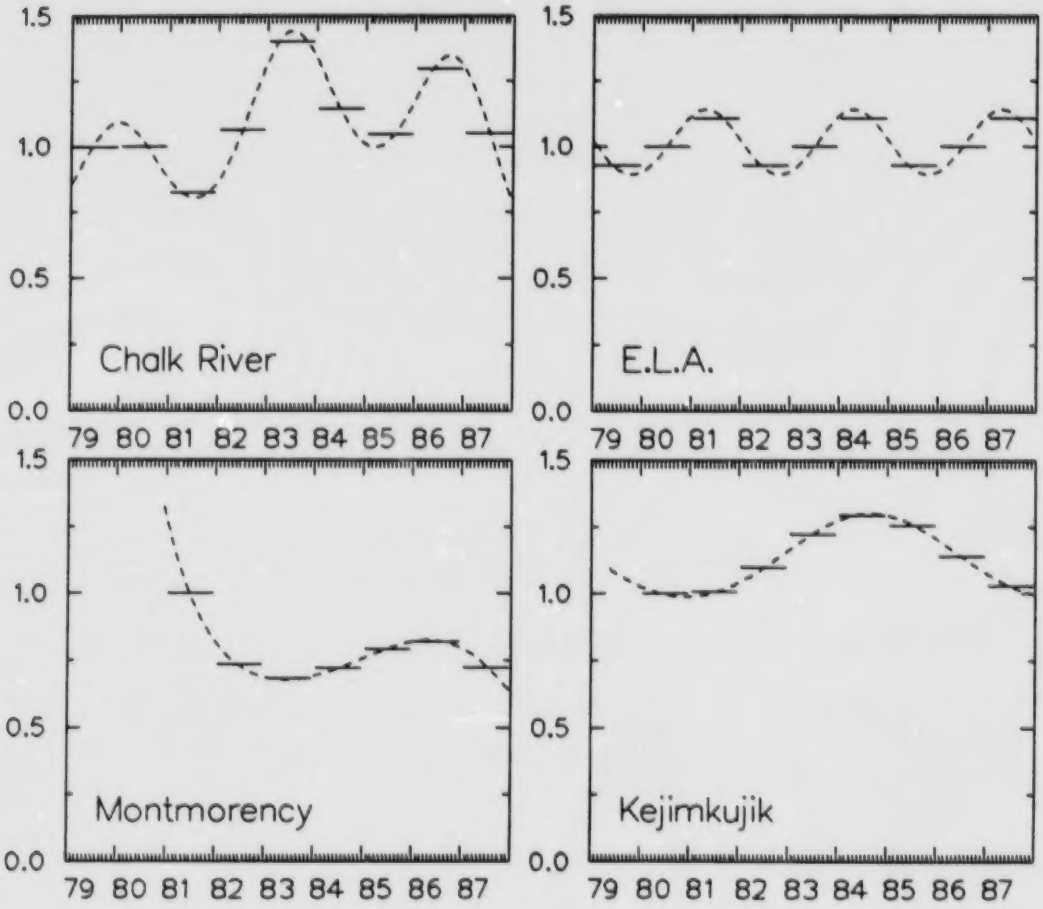


Figure 3D-13 Idem figure 3D-11 pour tous les NO_3^- dans l'air.

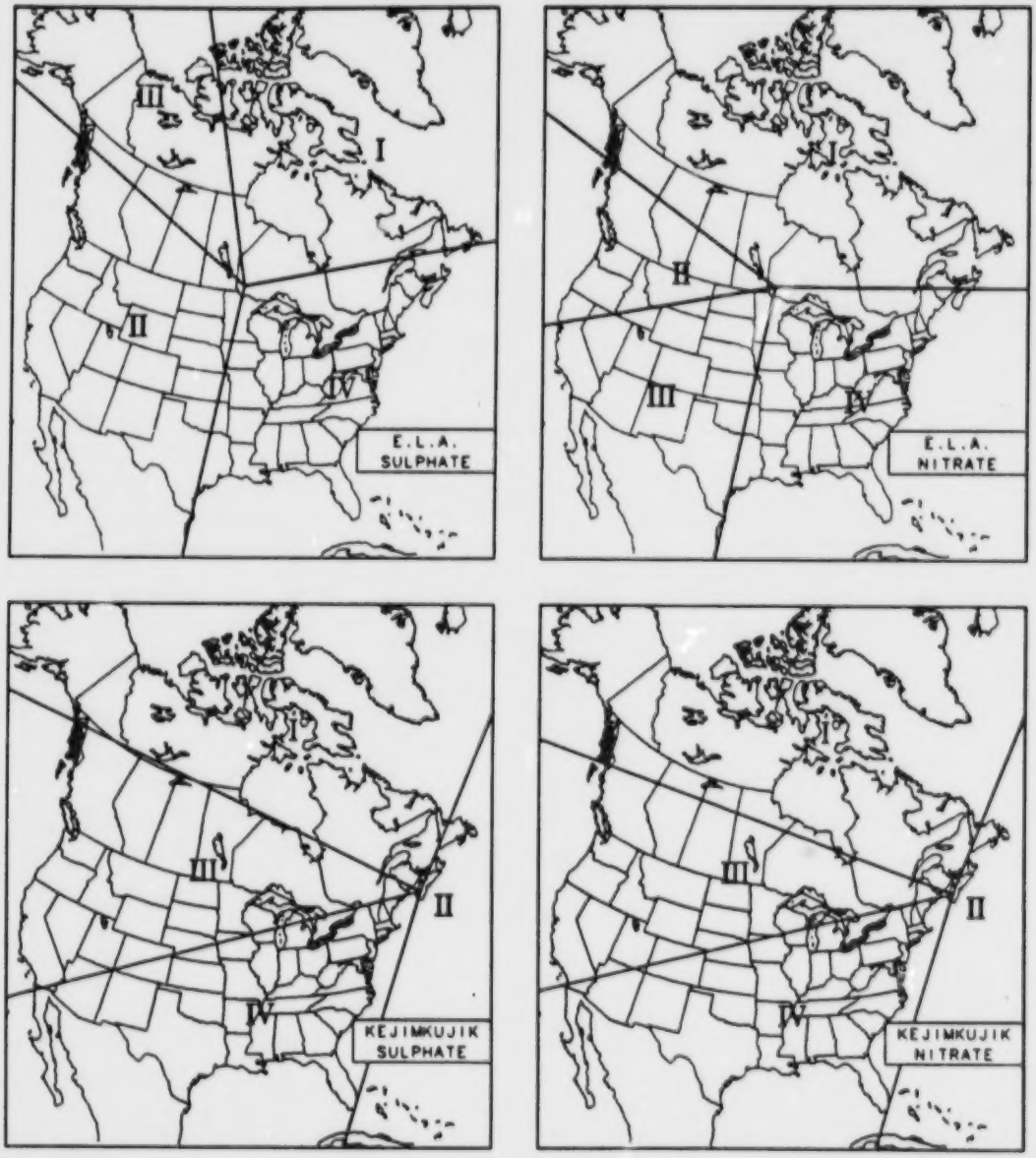


Figure 3D-14 Définition des secteurs délimités pour les sulfates et les nitrates dans la région E.L.A et à Kejimkujik.

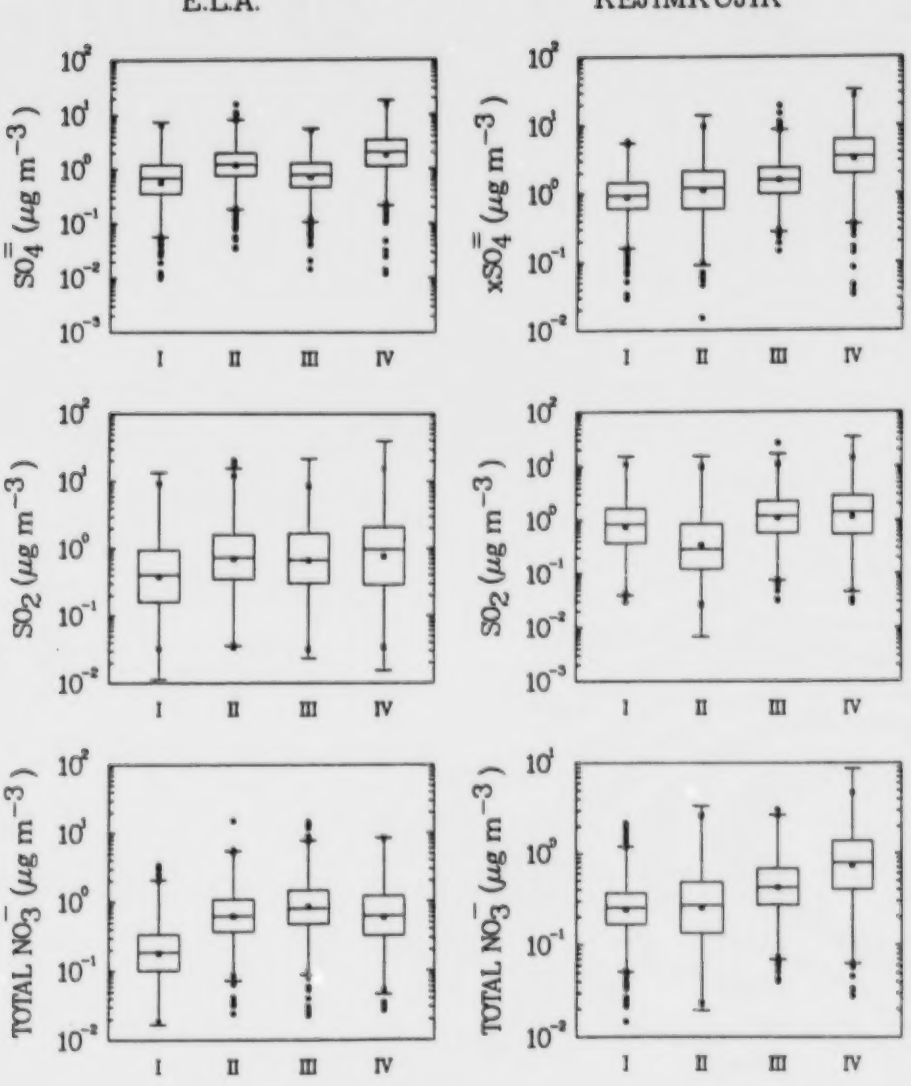


Figure 3D-15 Graphiques de boîtes représentant les concentrations atmosphériques de $SO_3^{\cdot}$, de SO_2 et de tous les $NO_3^{\cdot}$ pour les secteurs définis à la figure 3D-14, dans la région E.L.A. et à Kejimkujik. Dans chaque boîte, la ligne centrale représente la médiane, et les limites inférieure et supérieure, les valeurs du premier et du troisième quartile, respectivement. Les lignes qui se prolongent verticalement à partir des boîtes indiquent l'étendue de la distribution, leur longueur étant 1,5 fois la différence entre la valeur du premier et du troisième quartile. Les observations qui se trouvent au-delà des limites de ces lignes sont considérées comme des valeurs aberrantes et sont indiquées par des points. Les étoiles se trouvant sur la ligne verticale indiquent les valeurs maximales et minimales observées qui ne sont pas aberrantes. Les carrés noirs représentent les moyennes géométriques mensuelles.

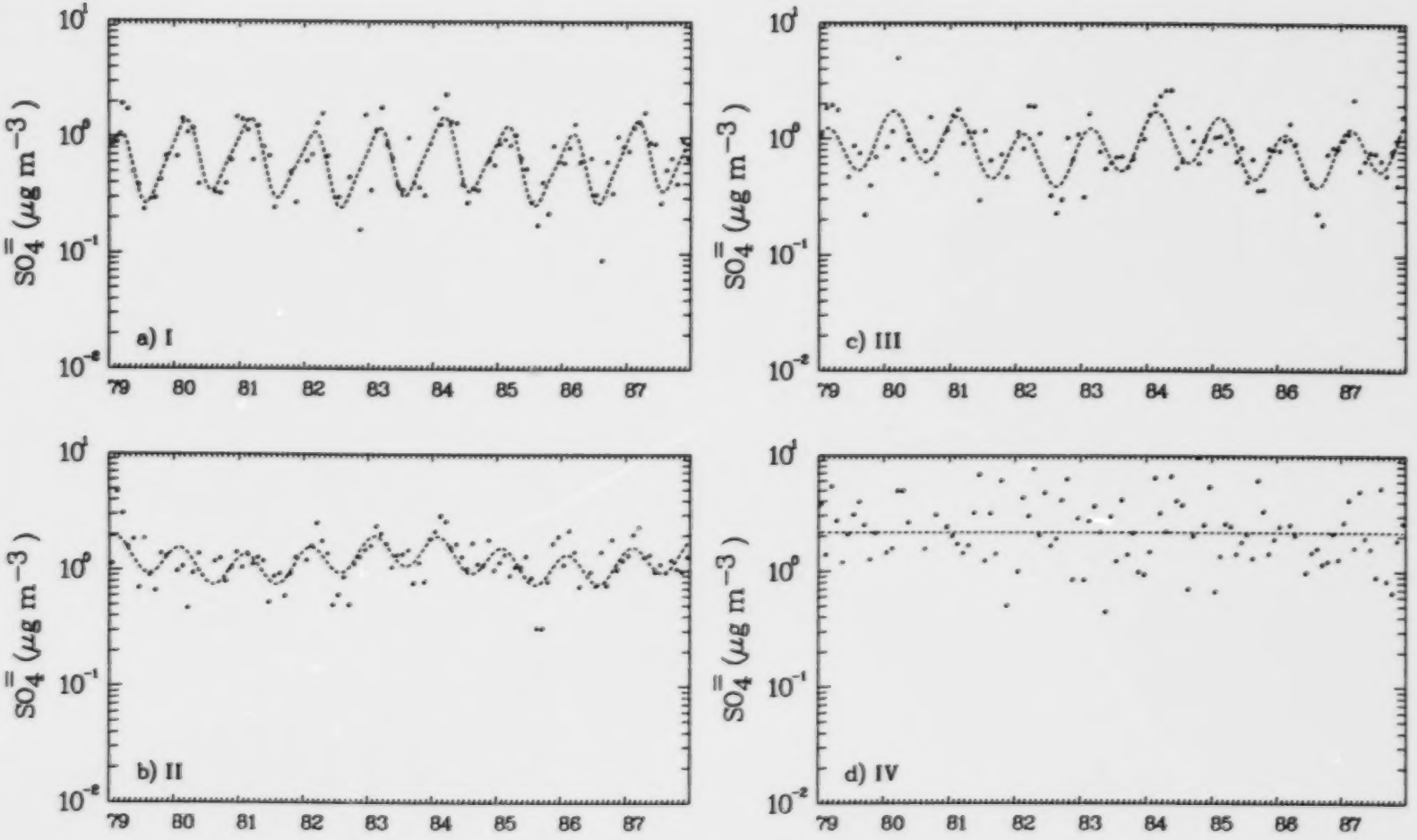


Figure 3D-16 Variation temporelle des médianes mensuelles des concentrations atmosphériques de $SO_4^=$ dans la région E.L.A. pour les secteurs définis dans la figure 3D-14 (ligne traitillée : valeurs modélisées; points : valeurs observées).

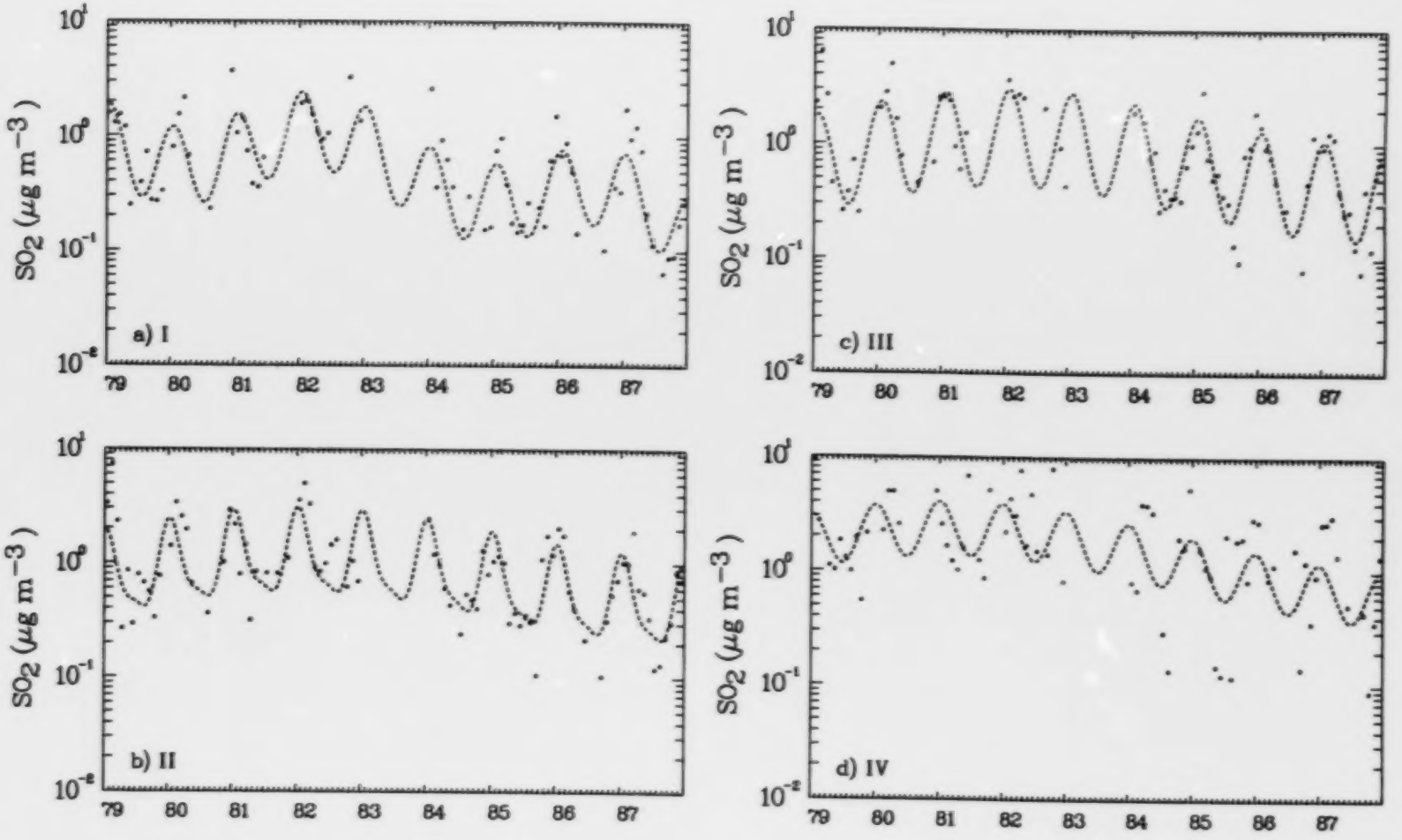


Figure 3D-17 Idem figure 3D-16 pour le SO_2.

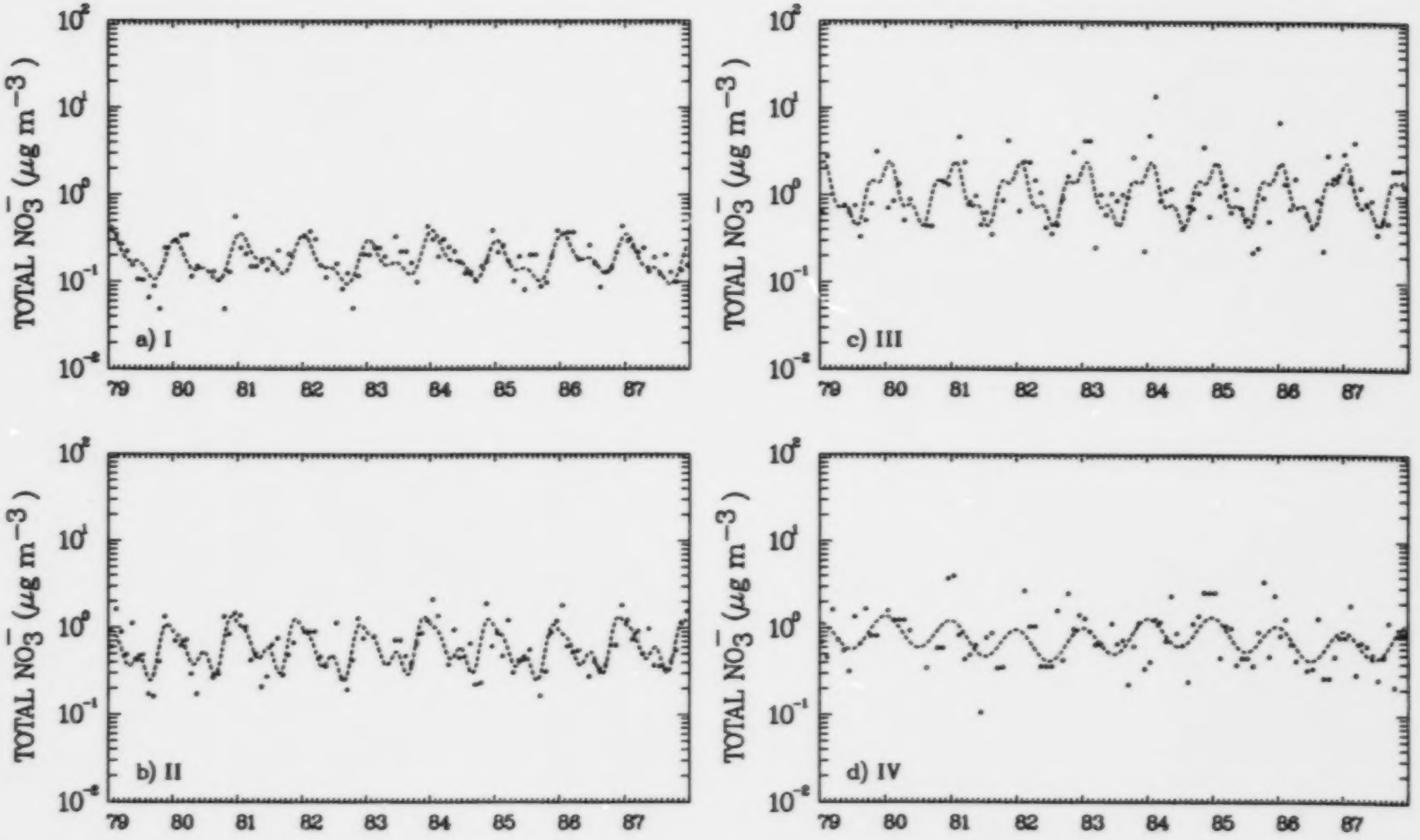


Figure 3D-18 Idem figure 3D-16 pour tous les NO_3^-.

KEJIMKUJIK

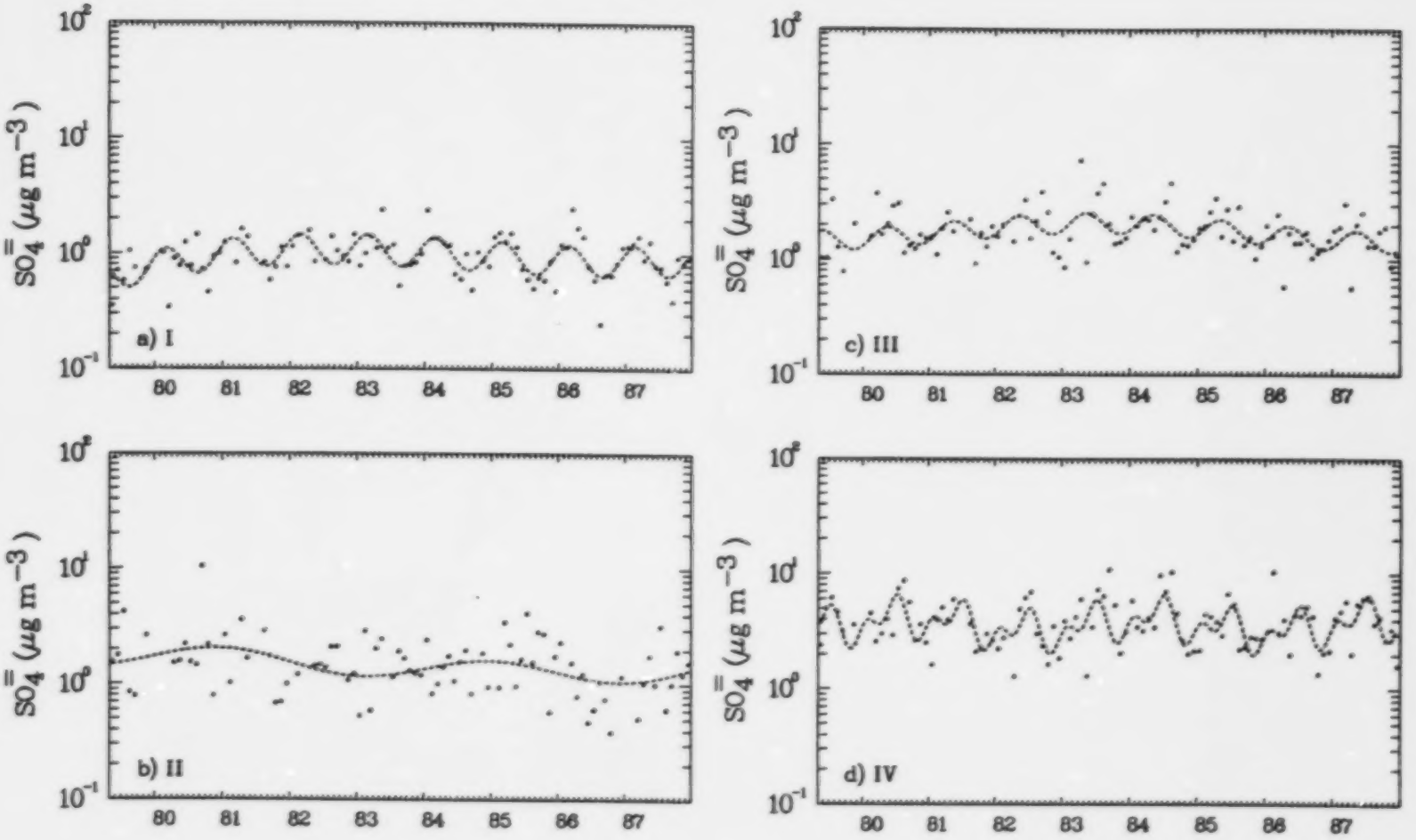


Figure 3D-19 Variation temporelle de la médiane des concentrations atmosphériques mensuelles de $SO_4^{=}$ à Kejimkujik pour les secteurs définis à la figure 3D-14 (ligne traitillée : valeurs modélisées; points : valeurs observées).

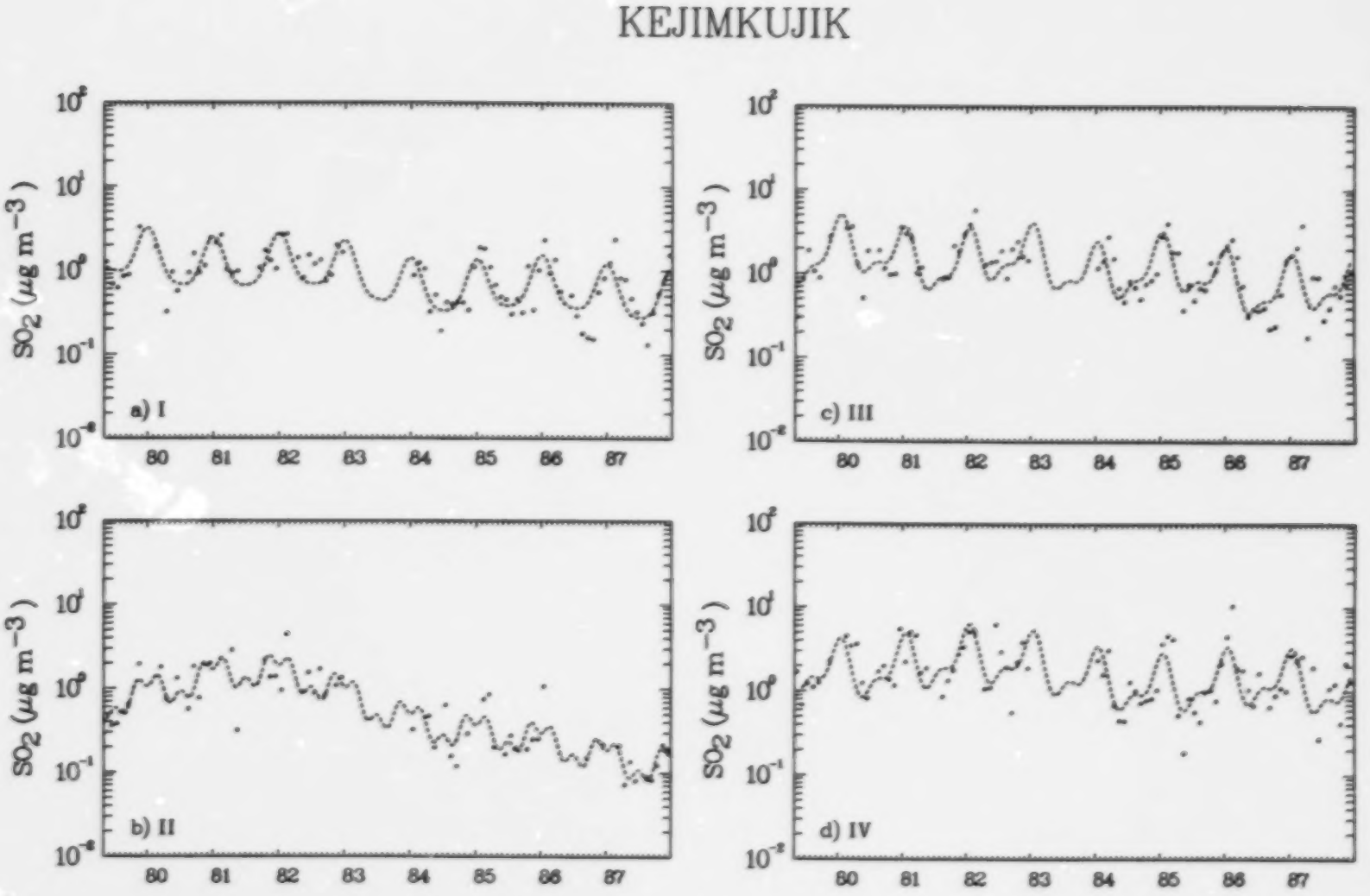


Figure 3D-20 Idem figure 3D-19 pour le SO_2.

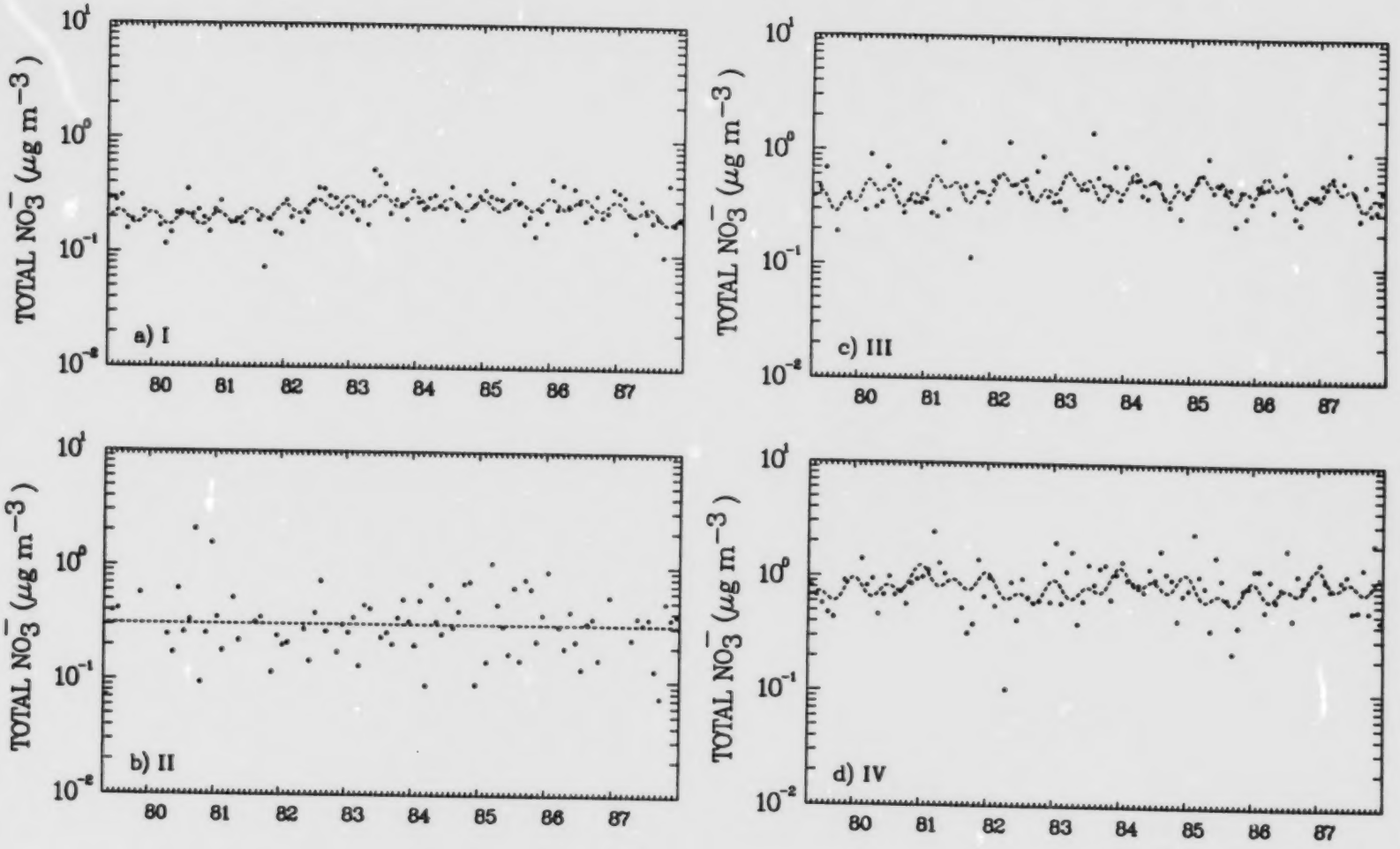


Figure 3D-21 Idem figure 3D-19 pour tous les NO_3^-.

TENDANCE À LONG TERME
DE SO_2

E.L.A

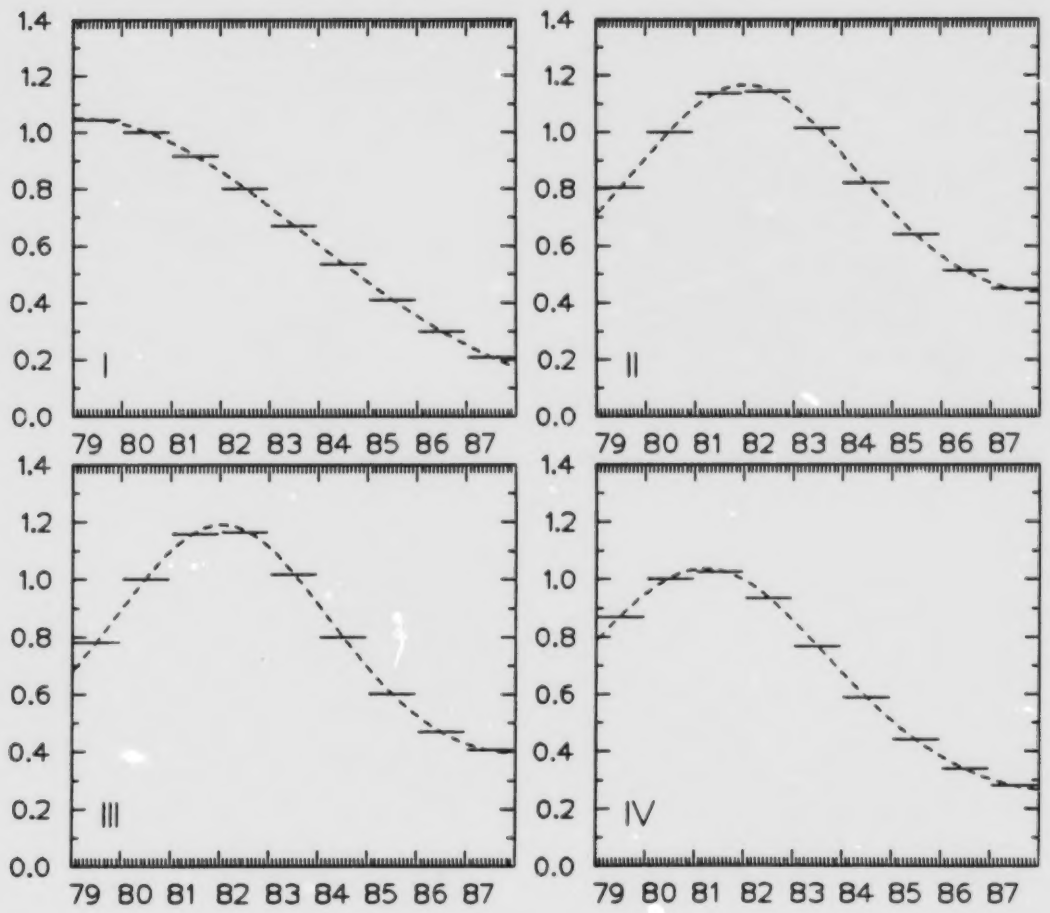


Figure 3D-22 Intersection et tendance à long terme de la médiane mensuelle des concentrations atmosphériques de SO_2 dans la région E.L.A normalisée d'après 1980 pour les quatre secteurs de la figure 3D-14 (ligne tratillée : tendance continue; ligne continue : moyennes annuelles normalisées).

CYCLE ET TENDANCE À LONG TERME
DE $SO_4^=$

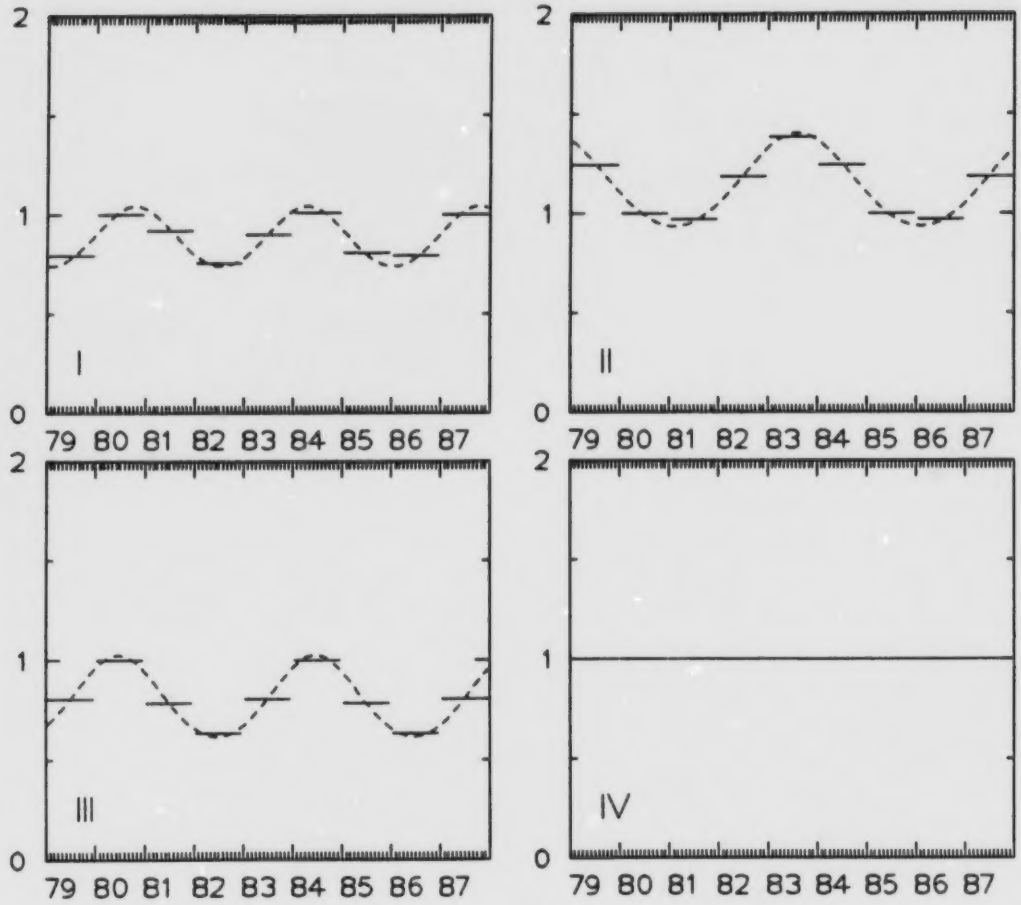


Figure 3D-23 Idem figure 3D-22 sauf qu'elle représente l'intersection, la tendance à long terme et le cycle à long terme du $SO_4^=$ dans l'air dans la région E.L.A.

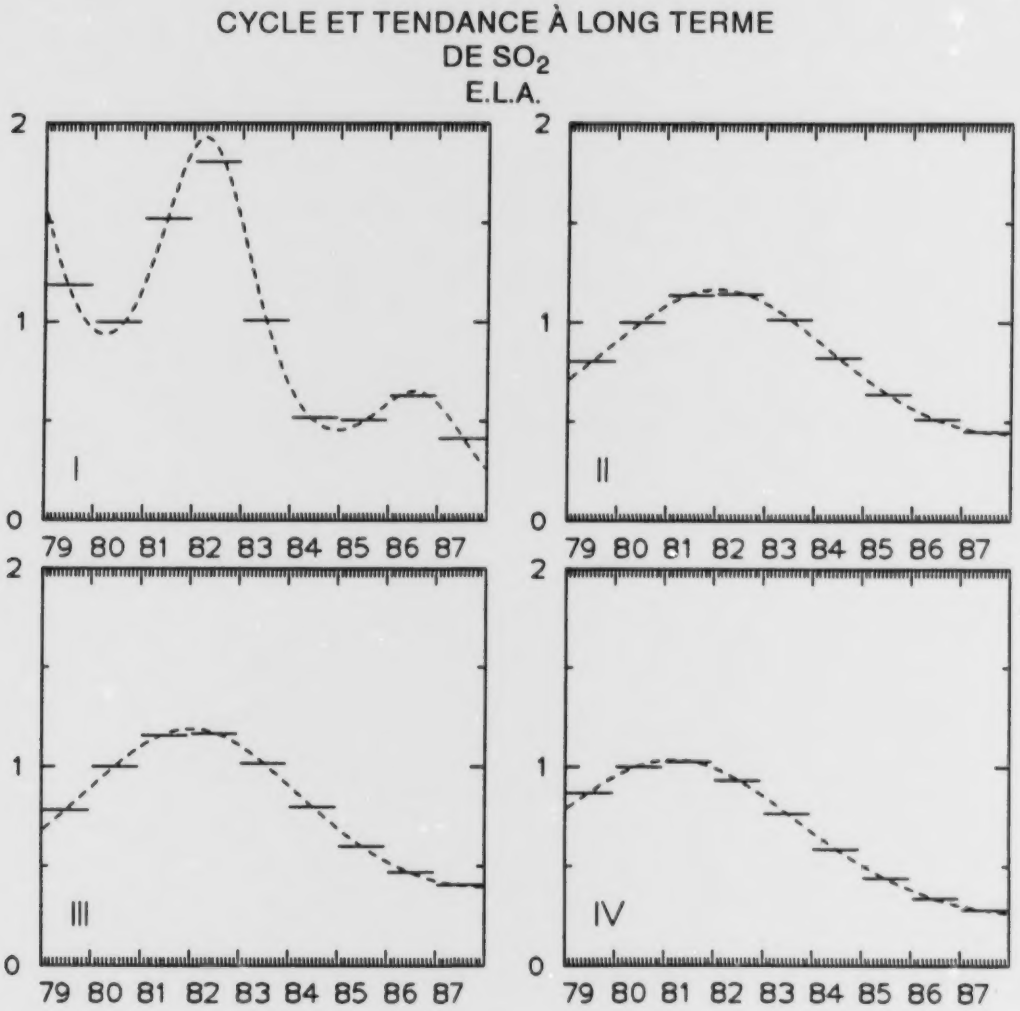


Figure 3D-24 Idem figure 3D-23 pour le SO_2 dans l'air.

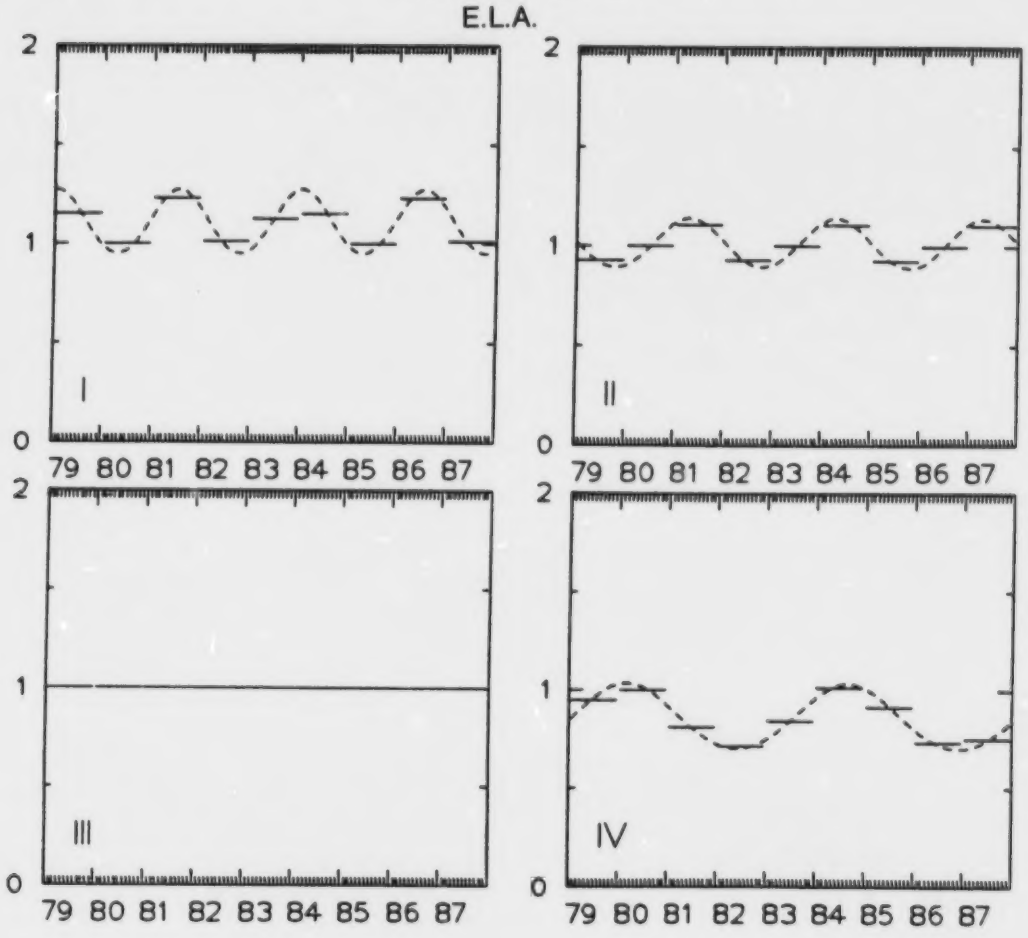


Figure 3D-25 Idem figure 3D-23 pour les NO_3^- dans l'air.

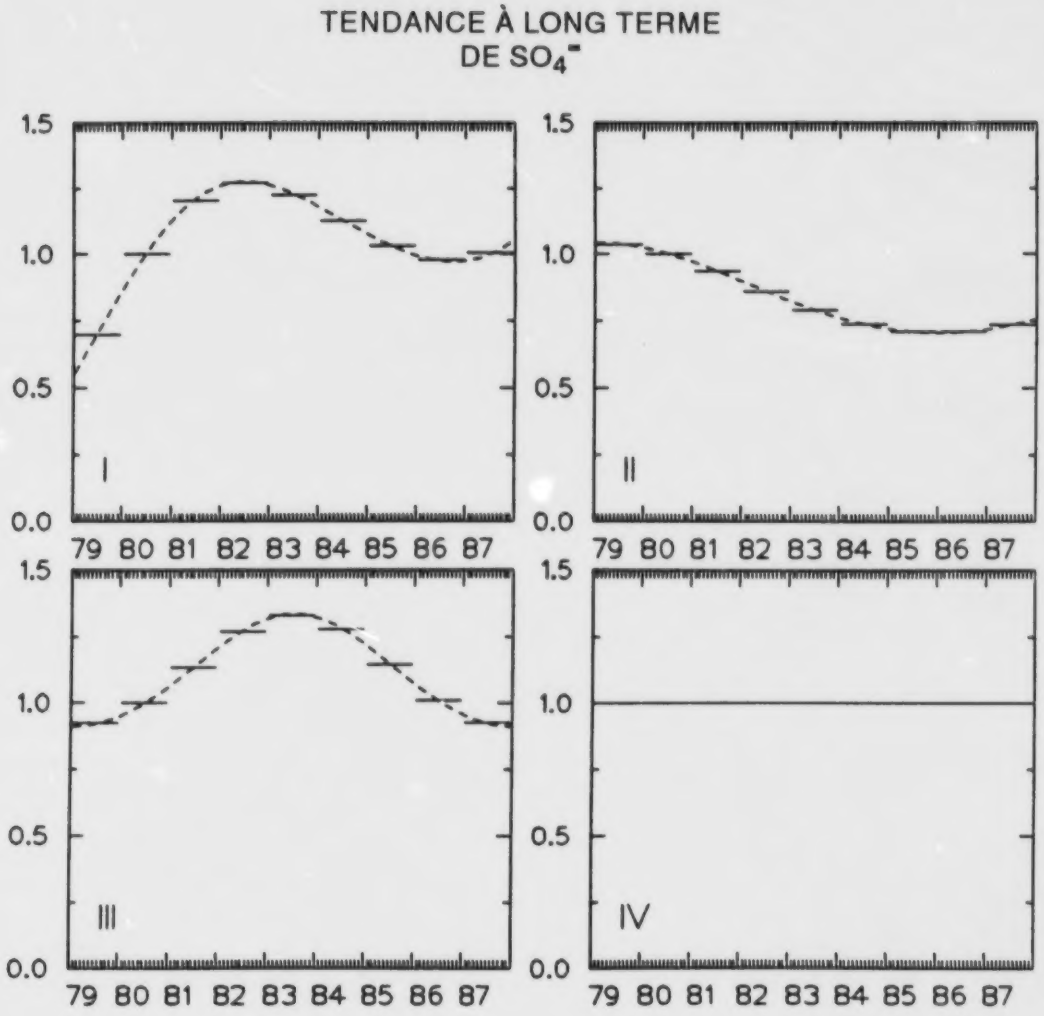


Figure 3D-26 Tendance à long terme de la médiane mensuelle des concentrations atmosphériques de SO_2 à Kejimkujik normalisée d'après 1980 pour les quatre secteurs de la figure 3D-14 (ligne traitillée : tendance continue; ligne continue : moyennes annuelles normalisées).

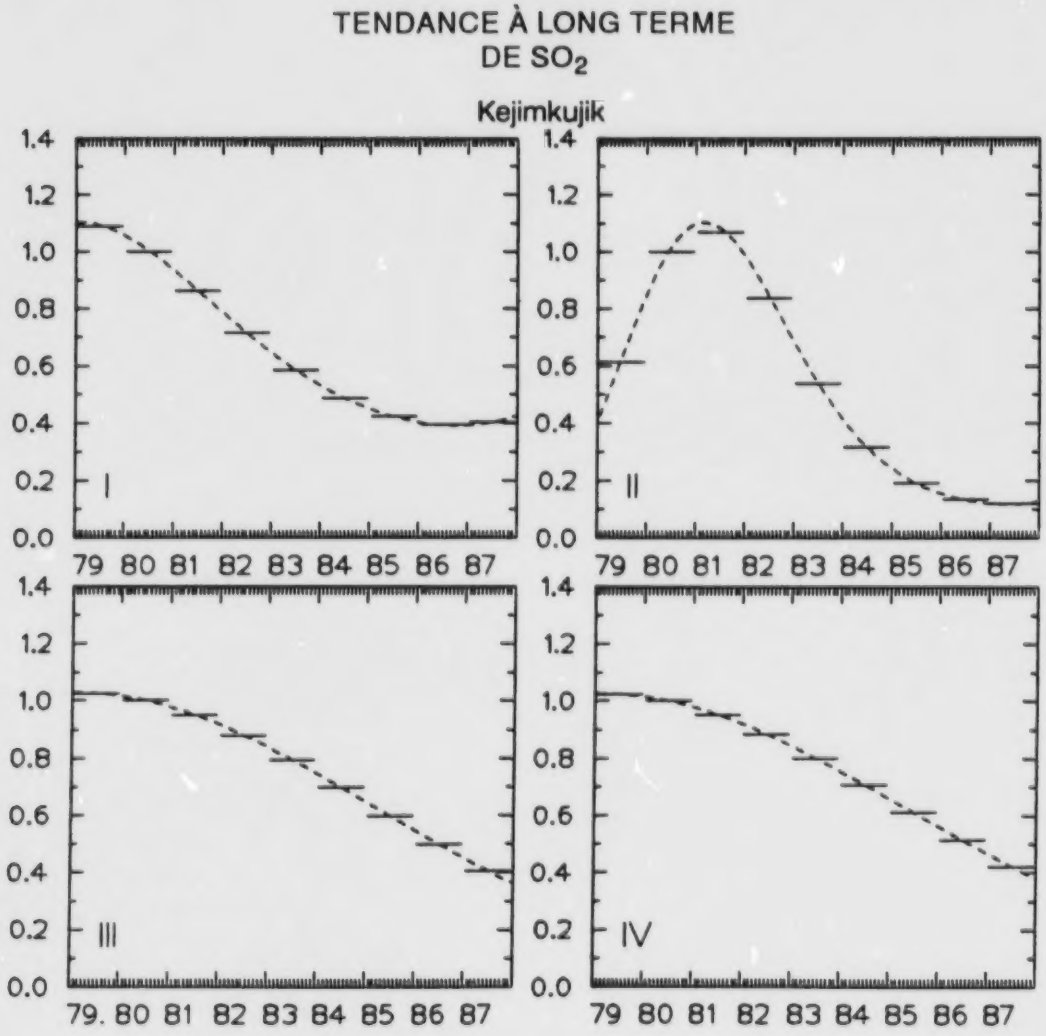


Figure 3D-27 Idem figure 3D-26 pour le SO_2 dans l'air.

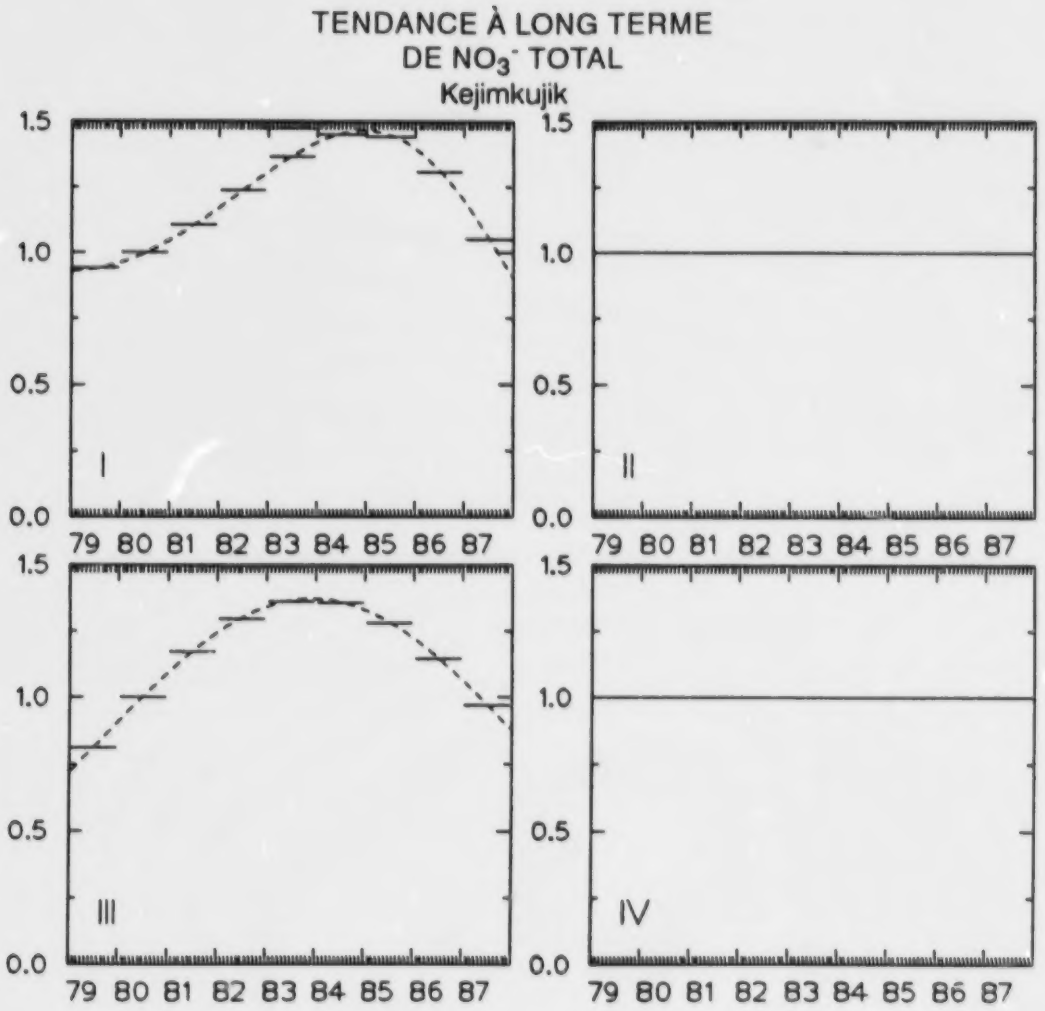


Figure 3D-28 Idem figure 3D-26 pour tous les NO_3^- dans l'air.

ANNEXE 3E

TENDANCES DE LA CHIMIE DES PRÉCIPITATIONS EN NOUVELLE-ÉCOSSE

1978 À 1987

LISTE DES FIGURES DE L'ANNEXE 3E

FIGURE n°		PAGE
3E-1	Concentrations du $SO_4^{=}$ en excès, de H^+, de NO_3^- et de NH_4^+ (μeql^{-1}) en Nouvelle-Écosse : 1978-1987. La figure montre également les émissions de SO_2 et de NO_2 provenant d'Amérique du Nord (10^6 T).	3-336
3E-2	Dépôts de $SO_4^{=}$ en excès, de NO_3^--N, de NH_4^+-N et de Ca^{+2} en excès en Nouvelle-Écosse : 1978 à 1987. La hauteur des précipitations est aussi illustrée.	3-336
3E-3	Concentration saisonnière de H^+, du $SO_4^{=}$ en excès, de NO_3^--N et du NH_4^+-N (μeql^{-1}). Les dépôts saisonniers de $SO_4^{=}$ en excès (meq m^{-2}) sont aussi montrés.	3-337
3E-4	Dépôts de sulfates en Nouvelle-Écosse (5 stations) et dans le parc Kejimkujik, situé au sud-ouest de la Nouvelle-Écosse.	3-337

ANNEXE 3E

TENDANCES DE LA CHIMIE DES PRÉCIPITATIONS EN NOUVELLE-ÉCOSSE 1978-1987

Plus de 1 400 échantillons de précipitations ont été recueillis chaque semaine à 5 sites de la Nouvelle-Écosse entre 1978 et 1987. En 1978 et en 1986, on a observé de fortes concentrations de H^+, de $SO_4^=$ non marin ($^*SO_4^=$) et de NO_3^-. Les plus faibles concentrations de ces trois composés ont été enregistrées au cours de l'année d'observation 1983 (fig. 3E-1). La figure 3E-1 présente les fluctuations dans les émissions de SO_2 et de NO_2. Ces dernières sont insuffisantes pour expliquer la variabilité observée dans les valeurs des concentrations et des dépôts. En 1983, les concentrations annuelles moyennes de H^+, de $^*SO_4^=$ et de NO_3^- ont été de 13, 16 et 6 μeq/l, respectivement. Ces valeurs étaient de 35, 28 et 13 μeq/l en 1986. Le pH moyen des précipitations était de 4,61 au cours des dix années de l'étude. Les années au cours desquelles le pH a été le plus acide sont 1979 (4,47) et 1986 (4,46). En 1983, le pH était de 4,89.

Dans la province, les dépôts moyens de $^*SO_4^=$ (fig. 3E-2) étaient supérieurs à 20 kg/ha de 1978 à 1980 tandis qu'en 1983, leur valeur a atteint le faible niveau de 11 kg/ha. En 1986, la valeur maximale a été de 18 kg/ha. Ni la valeur du NO_3^-N ni celle du NH_4^+.N n'ont excédé 3 kg/ha, et la somme des deux était inférieure à 5 kg/ha au cours de chacune des dix années. Les dépôts de calcium n'ont pas montré de relations claires par rapport aux dépôts de $^*SO_4^=$.

Le rapport (équivalents) entre NO_3^- et $^*SO_4^=$ était de 0,4; la majeure partie de l'acidité des précipitations résultait donc du H_2SO_4. Cependant, une analyse de régression multiple a révélé que H^+ réagit davantage aux changements dans les concentrations de NO_3^- que le $^*SO_4^=$. L'équation suivante explique 75 % de la variance totale de la concentration de H^+:

$$H^+ = 1{,}02\ NO_3^- + 0{,}51\ ^*SO_4^= - 0{,}55\ Ca^{+2} - 0{,}25\ NH_4^+ + 0{,}004 \quad (1)$$

On a examiné les rapports des concentrations moyennes pendant l'été (JJA) en fonction de ces concentrations pendant l'hiver (JFM). Au cours de l'été, les valeurs du $^*SO_4^=$ et de H^+ ont été 1,8 fois supérieures aux valeurs observées pendant l'hiver. Les rapports JJA/JFM pour NO_3^- et H^+ ont été de 1,4 et de 2,5, respectivement (fig. 3E-3).

On a observé un décroissance relativement constante dans le rapport annuel $^*SO_4^=$: NO_3^- (μeq/l). Ce rapport était d'environ 2,5 au cours des premières années de l'étude et s'approchait de 2,0 en 1987. Cela indique peut-être que les concentrations de $SO_4^=$ ont subi une légère baisse au cours de la période d'étude, déduction qui correspond aux résultats mentionnés dans l'annexe 3D, quoique une décennie de données est insuffisante pour démontrer les tendances qui peuvent exister à l'intérieur du domaine des

valeurs des fluctuations annuelles.

La figure 3E-4 illustre une démonstration de la fiabilité d'une base de données compilée à partir d'échantillons recueillis chaque semaine (moyenne pour la Nouvelle-Écosse) en regard de celle d'échantillons recueillis tous les jours (parc Kejimkujik). Les faibles réductions dans les dépôts observées dans les parties situées à l'est de la province ont été décrites précédemment (Underwood et al, 1987). Exception faite de ce phénomène, il est évident que les données obtenues de CAPMoN à Kejimkujik (Summers, communication personnelle) sont représentatives des régions rurales de la Nouvelle-Écosse.

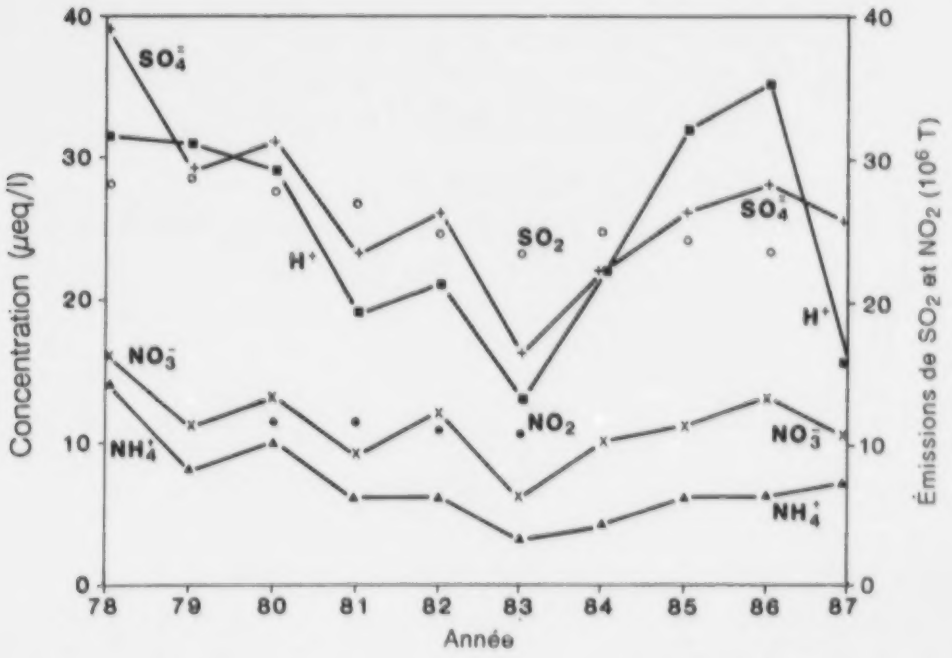


Figure 3E-1 Concentrations du $SO_4^{=}$ en excès, de H^+, de NO_3^- et de NH_4^+ (μeql^{-1}) en Nouvelle-Écosse : 1978-1987. La figure montre également les émissions de SO_2 et de NO_2 provenant d'Amérique du Nord (10^6 T).

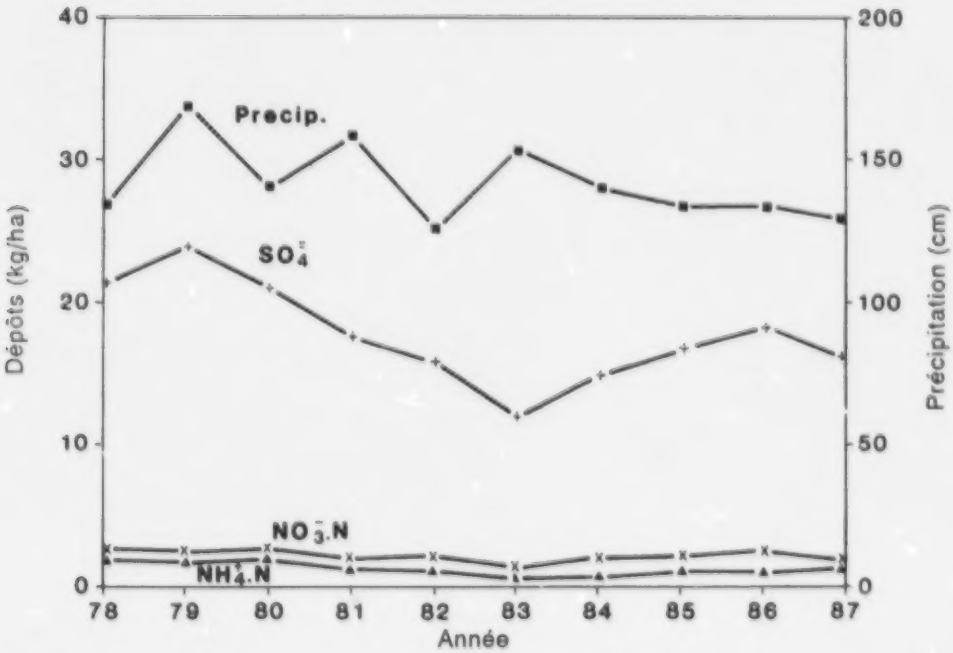


Figure 3E-2 Dépôts de $SO_4^{=}$ en excès, de NO_3^--N, de NH_4^+-N et de Ca^{+2} en excès en Nouvelle-Écosse : 1978 à 1987. La hauteur des précipitations est aussi illustrée.

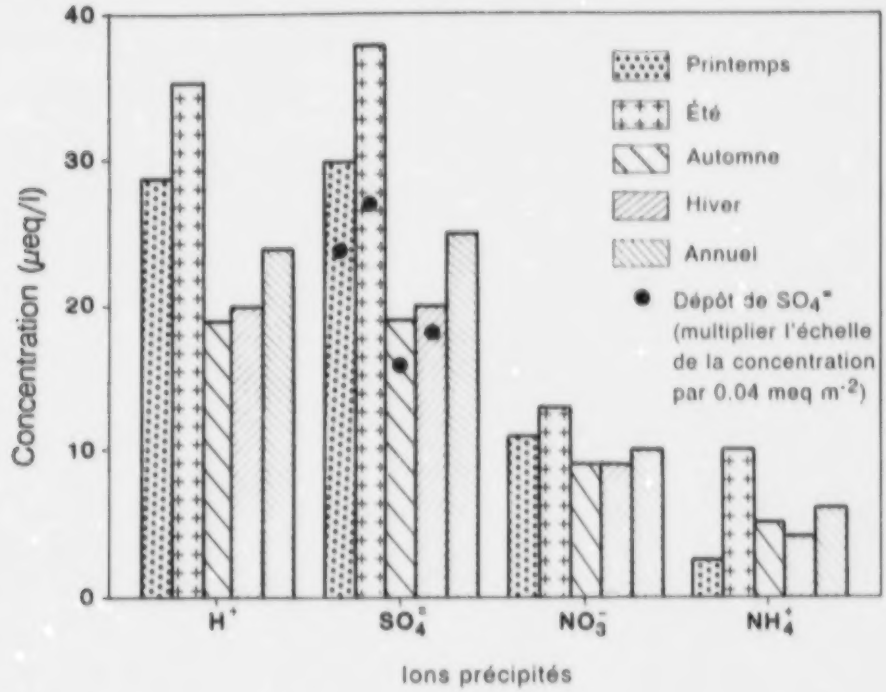


Figure 3E-3 Concentration saisonnière de H^+, du $SO_4^=$ en excès, de NO_3^--N et du NH_4^+-N (μeql^{-1}). Les dépôts saisonniers de $SO_4^=$ en excès (meq m^{-2}) sont aussi montrés.

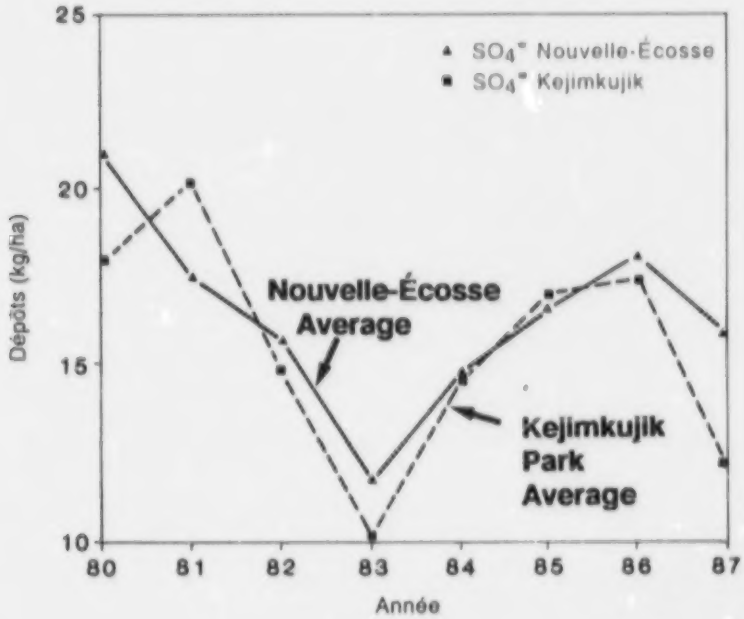


Figure 3E-4 Dépôts de sulfates en Nouvelle-Écosse (5 stations) et dans le parc Kejimkujik, situé au sud-ouest de la Nouvelle-Écosse.

ANNEXE 3F

VARIATION EN FONCTION DU TEMPS DES CONCENTRATIONS DE SULFATES ET DE NITRATES DANS L'AIR ET DANS LES PRÉCIPITATIONS À DORSET (ONTARIO)

LISTE DES TABLEAU DE L'ANNEXE 3F

TABLEAU n°		PAGE
3F-1	Analyse des séries chronologiques saisonnières : Données sur les sulfates provenant de Dorset	3-355
3F-2	Analyse des séries chronologiques saisonnières : Concentrations des nitrates totaux dans les précipitations: Dorset	3-356
3F-3	Analyse des séries chronologiques saisonnières: Concentrations atmosphériques de soufre total: Dorset	3-357
3F-4	Analyse des séries chronologiques saisonnières Concentrations atmosphériques des nitrates totaux: Dorset	3-358

LISTE DES FIGURES DE L'ANNEXE 3F

FIGURE n°		PAGE
3F-1	Concentrations saisonnières des sulfates dans les précipitations, à Dorset (Ontario) : 1980 à 1986.	3-359
3F-2	Concentrations des sulfates dans les précipitations en hiver, à Dorset (Ontario) : 1981 à 1986.	3-360
3F-3	Concentrations des sulfates dans les précipitations au printemps, à Dorset (Ontario) : 1981 à 1986.	3-360
3F-4	Concentrations des sulfates dans les précipitations en été, à Dorset (Ontario) : 1980 à 1986.	3-360
3F-5	Concentrations des sulfates dans les précipitations en automne, à Dorset (Ontario) : 1980 à 1986.	3-360
3F-6	Composante cyclique des concentrations saisonnières dans les précipitations, à Dorset (Ontario) : 1981 à 1986.	3-361
3F-7	Valeurs relatives saisonnières particulières des sulfates dans les précipitations, par trimestre, à Dorset (Ontario) : 1981 à 1986.	3-361
3F-8	Composante irrégulière des concentrations saisonnières de sulfates dans les précipitations en regard de la quantité de précipitations, à Dorset (Ontario) : 1981 à 1986.	3-361
3F-9	Concentrations saisonnières des sulfates corrigées en fonction de la quantité de précipitations, à Dorset (Ontario): 1981 à 1986.	3-361
3F-10	Concentrations des sulfates en hiver corrigées en fonction de la quantité de précipitations, à Dorset (Ontario): 1981 à 1986.	3-362
3F-11	Concentrations des sulfates au printemps corrigées en fonction de la quantité de précipitations, à Dorset (Ontario) : 1981 à 1986.	3-362
3F-12	Concentrations des sulfates en été corrigées en fonction de la quantité de précipitations, à Dorset (Ontario) : 1981 à 1986.	3-362

LISTE DES FIGURES (suite)

FIGURE n°		PAGE
3F-13	Concentrations des sulfates en automne corrigées en fonction de la quantité de précipitations, à Dorset (Ontario): 1981 à 1985.	3-362
3F-14	Concentrations saisonnières de $N\text{-}NO_3^-$ dans les échantillons de précipitations, à Dorset (Ontario) : 1981 à 1986.	3-363
3F-15	Concentrations de $N\text{-}NO_3^-$ en hiver dans les échantillons de précipitations, à Dorset (Ontario) : 1981 à 1986.	3-364
3F-16	Concentrations de $N\text{-}NO_3^-$ au printemps dans les échantillons de précipitations, à Dorset (Ontario) : 1981 à 1986.	3-364
3F-17	Concentrations de $N\text{-}NO_3^-$ en été dans les échantillons de précipitations, à Dorset (Ontario) : 1981 à 1986.	3-364
3F-18	Concentrations de $N\text{-}NO_3^-$ en automne dans les échantillons de précipitations, à Dorset (Ontario) : 1981 à 1986.	3-364
3F-19	Composante cyclique des concentrations saisonnières de $N\text{-}NO_3^-$ à Dorset (Ontario) : 1981 à 1986.	3-365
3F-20	Valeurs relatives saisonnières particulières des $N\text{-}NO_3^-$ dans les précipitations, par trimestres, à Dorset (Ontario) : 1981 à 1986.	3-365
3F-21	Composante irrégulière des concentrations saisonnières des $N\text{-}NO_3^-$ en regard de la quantité de précipitations, à Dorset (Ontario) : 1981 à 1986.	3-365
3F-22	Concentrations saisonnières des $N\text{-}NO_3^-$ corrigées en fonction de la quantité de précipitations, à Dorset (Ontario): 1981 à 1986.	3-365
3F-23	Concentrations des $N\text{-}NO_3^-$ en hiver corrigées en fonction de la quantité de précipitations, à Dorset (Ontario): 1981 à 1986.	3-366
3F-24	Concentrations des $N\text{-}NO_3^-$ au printemps corrigées en fonction de la quantité de précipitations, à Dorset (Ontario): 1981 à 1986.	3-366

LISTE DES FIGURES (suite)

FIGURE n°		PAGE
3F-25	Concentrations des $N\text{-}NO_3^-$ en été corrigées en fonction de la quantité de précipitations, à Dorset (Ontario) : 1981 à 1985.	3-366
3F-26	Concentrations des $N\text{-}NO_3^-$ en automne corrigées en fonction de la quantité de précipitations, à Dorset (Ontario): 1981 à 1985.	3-366
3F-27	Concentrations atmosphériques saisonnières de tout le soufre, à Dorset (Ontario) : 1981 à 1986.	3-367
3F-28	Concentrations atmosphériques de tout le soufre, en hiver, à Dorset (Ontario) : 1981 à 1986.	3-368
3F-29	Concentrations atmosphériques de tout le soufre, au printemps, à Dorset (Ontario) : 1982 à 1986.	3-368
3F-30	Concentrations atmosphériques de tout le soufre, en été, à Dorset (Ontario) : 1982 à 1986.	3-368
3F-31	Concentrations atmosphériques de tout le soufre, en automne, à Dorset (Ontario) : 1981 à 1986.	3-368
3F-32	Valeurs relatives saisonnières particulières des concentrations atmosphériques saisonnières de tout le soufre, à Dorset (Ontario) : 1982 à 1986.	3-369
3F-33	Composante cyclique des concentrations atmosphériques saisonnières de tout le soufre, à Dorset (Ontario) : 1982 à 1986.	3-369
3F-34	Composantes irrégulières des concentrations atmosphériques saisonnières de tout le soufre, à Dorset (Ontario) : 1982 à 1986.	3-369
3F-35	Concentrations atmosphériques saisonnières de tout le soufre corrigées en fonction d'un facteur climatologique, à Dorset (Ontario) : 1982 à 1986.	3-369
3F-36	Concentrations atmosphériques de tout le soufre en hiver corrigées en fonction d'un facteur climatologique, à Dorset (Ontario) : 1982 à 1986.	3-370

LISTE DES FIGURES (suite)

FIGURE n°		PAGE
3F-37	Concentrations atmosphériques de tout le soufre au printemps corrigées en fonction d'un facteur climatologique, à Dorset (Ontario) : 1982 à 1986.	3-370
3F-38	Concentrations atmosphériques de tout le soufre en été corrigées en fonction d'un facteur climatologique, à Dorset (Ontario) : 1982 à 1986.	3-370
3F-39	Concentrations atmosphériques de tout le soufre en hiver corrigées en fonction d'un facteur climatologique, à Dorset (Ontario) : 1982 à 1985.	3-370
3F-40	Concentrations atmosphériques saisonnières de tous les nitrates, à Dorset (Ontario) : 1982 à 1986.	3-371
3F-41	Concentrations atmosphériques de tous les nitrates en hiver, à Dorset (Ontario) : 1982 à 1986.	3-372
3F-42	Concentrations atmosphériques de tous les nitrates au printemps, à Dorset (Ontario) : 1982 à 1986.	3-372
3F-43	Concentrations atmosphériques de tous les nitrates en été, à Dorset (Ontario) : 1982 à 1986.	3-372
3F-44	Concentrations atmosphériques de tous les nitrates en automne, à Dorset (Ontario) : 1982 à 1986.	3-372
3F-45	Valeurs relatives saisonnières particulières des concentrations atmosphériques saisonnières de tous les nitrates, à Dorset (Ontario) : 1982 à 1986.	3-373
3F-46	Composantes cycliques à Dorset (Ontario) : 1982 à 1986.	3-373
3F-47	Composantes irrégulières à Dorset (Ontario) : 1982 à 1986.	3-373
3F-48	Concentrations atmosphériques de tous les nitrates corrigées en fonction d'un facteur climatologique, à Dorset (Ontario) : 1982 à 1986.	3-373
3F-49	Concentrations atmosphériques de tous les nitrates corrigées en fonction d'un facteur climatologique : hiver.	3-374
3F-50	Concentrations atmosphériques de tous les nitrates corrigées en fonction d'un facteur climatologique : printemps.	3-374

LISTE DES FIGURES (suite)

FIGURE n°		PAGE
3F-51	Concentrations atmosphériques de tous les nitrates corrigées en fonction d'un facteur climatologique : été.	3-374
3F-52	Concentrations atmosphériques de tous les nitrates corrigées en fonction d'un facteur climatologique : automne.	3-374

ANNEXE 3F

VARIATION EN FONCTION DU TEMPS DES CONCENTRATIONS DE SULFATES ET DE NITRATES DANS L'AIR ET DANS LES PRÉCIPITATIONS À DORSET (ONTARIO)

Introduction

Il est généralement admis qu'une période d'au moins dix ans est nécessaire pour que des tendances dans les concentrations des précipitations et dans les dépôts puissent être observées. Cependant, la base de données du réseau actuel APIOS (Étude sur les précipitations acides en Ontario), qui comprend des données validées s'étendant maintenant sur une période de six ans (1981 à 1986), porte sur une période suffisamment longue pour fournir au moins certaines des caractéristiques des séries temporelles à déterminer. Dans le cadre de cette étude, on a utilisé les données provenant de Dorset. Ce site rural est situé dans le centre de l'Ontario, à l'intérieur de la région vulnérable de Muskoka. Les données ont été obtenues du réseau cumulatif APIOS (Chan et al., 1985), lequel a été mis sur pied dans le but particulier de surveiller les tendances à long terme dans les dépôts.

Modalités

Au cours de l'étude, on a appliqué une analyse classique des séries chronologiques, laquelle est expliquée en détail dans des ouvrages classiques (Reinmuth, 1977); en voici une brève description.

En général, un modèle d'analyse des séries chronologiques comprend quatre composantes, soit les composantes tendancielle (T), cyclique (C), saisonnière (S) et aléatoire (I), qui sont considérée comme multiplicative. L'analyse a été appliquée à des concentrations moyennes saisonnières, et les saisons ont été définies de façon à ce que janvier, février et mars correspondent à l'hiver, etc. Chaque composante a une signification particulière et décrit des caractéristiques spécifiques du comportement temporel des données.

- La composante tendancielle décrit l'effet net des facteurs à long terme; elle est habituellement modélisée comme une ligne droite ou une courbe plutôt lissée.

- La composante cyclique décrit les facteurs périodiques dont la période est supérieure à un an, y compris les cycles des changements climatiques; elle peut comprendre deux cycles ou plus de période et d'amplitude différentes.

- La composante saisonnière, comme son nom l'indique, décrit les effets saisonniers et consiste en un cycle répétitif d'une période d'un an (ou moins).

- La composante aléatoire est constituée des facteurs résiduels qui demeurent après que les autres composantes ont été extraites.

La méthode de décomposition utilisée pour extraire ces composantes est la suivante.

1. Calculer la composante tendancielle (T) en ajustant une ligne ou une courbe plutôt lissée par simple régression.

2. Calculer la composante cyclique-saisonnière-aléatoire (CSI) en divisant chaque donnée ponctuelle par la valeur tendancielle correspondante.

3. Calculer la composante tendancielle-cyclique (TC), à l'aide d'une moyenne mobile centrée de la série chronologique des données d'origine pour les trimestres. Ce calcul de moyenne aplanit les composantes saisonnières et aléatoires.

4. Calculer la composante saisonnière-aléatoire (SI) en divisant chaque donnée ponctuelle par la valeur TC correspondante.

5. Calculer la composante cyclique (C) en divisant la valeur TC (étape 3) par les valeurs tendancielles, ce qui produit un résultat nivelé.

6. Extraire la composante saisonnière (S) à partir de la valeur SI. Lorsque cette dernière est stable, on calcule la moyenne des valeurs SI pour chaque trimestre. Les effets irréguliers auront tendance à s'annuler; les résultats reflètent donc les effets saisonniers. Au cours de l'étude, on a utilisé des médianes pour éviter la possibilité que des valeurs aberrantes gauchissent la moyenne.

7. Déterminer la composante cyclique-aléatoire (CI) en calculant le quotient de la valeur CSI (étape 2) par la valeur S (étape 6).

8. Obtenir la composante aléatoire en divisant la valeur CI (étape 7) par la valeur C.

La présente analyse diffère de celle qui est décrite à l'annexe 3D du fait que l'on a procédé à l'extraction successive des composantes à partir des séries chronologiques des données plutôt que d'ajuster le modèle complet aux données en une seule étape. Cette méthode offre une plus grande flexibilité pour l'ajustement des cycles répétitifs, mais il est possible qu'elle soit plus restrictive en ce qui a trait à l'extraction de la composante tendancielle. On a supposé une tendance linéaire, car le modèle est ajusté à tout l'ensemble des données. En raison du bruit dû aux cycles très cours dans les données, presque n'importe quel modèle de détermination des tendances (dans des limites

raisonnables) produirait un ajustement équivalent. Cependant, les restrictions possibles inhérentes à l'hypothèse d'une tendance linéaire sont compensées par le fait que les écarts par rapport à la linéarité seront déterminés dans les composantes cycliques ou aléatoires ou dans les deux.

Résultats et discussion

Sulfates dans les précipitations

Le tableau 3F-1 donne la liste des résultats de la décomposition de la série chronologique des concentrations de sulfates dans les précipitations.

La figure 3F-1 présente un graphique des données d'origine en fonction du temps. Le cycle saisonnier prononcé y est clairement visible. On a ajusté une tendance linéaire à cette série de la façon décrite ci-dessus. Cette tendance s'exprime comme suit :

$$SO_4^{=} = 3.4244 - 0.0515t$$

où t correspond au temps exprimé en saison. L'équation représente une diminution de la concentration des sulfates de 1,5 % par saison, ou de 6 % par année. Les figures 3F-2 à 3F-5 présentent les graphiques en fonction du temps pour chaque saison.

La composante cyclique est tracée à la figure 3F-6. Elle comprend un cycle d'un an de faible amplitude (0,01) et un cycle de deux ans d'amplitude supérieure (0,2). La superposition de ces deux cycles donne une onde complexe, où les valeurs maximales et minimales globales reviennent tous les cinq ans. Cette période correspond approximativement à la période sur laquelle les données s'étendent. Il s'ensuit donc que la composante cyclique comporte une grande incertitude et qu'elle est susceptible de changer à mesure que les données s'accumuleront.

La figure 3F-7 présente le graphique des composantes saisonnières. Obtenues à partir de moyennes calculées pour la période de 1981 à 1986, les valeurs de ces composantes sont : 0,50, pour l'hiver; 1,13, pour le printemps; 1,38, pour l'été; et 0,87, pour l'automne. Ces résultats concordent avec ceux obtenus de nombreuses autres études, selon lesquels les concentrations de sulfates dans les précipitations étaient maximales en été et minimales en hiver.

La figure 3F-8 comprend un graphique de la composante aléatoire ainsi qu'une indication de la hauteur des précipitations pour chaque saison. Dans cette figure, il y a des indications évidentes d'une corrélation inverse entre la composante aléatoire et la hauteur des précipitations. Il est possible d'utiliser ces données pour corriger l'effet de la hauteur des précipitations en appliquant une régression à la composante aléatoire en fonction de la hauteur des précipitations (on a trouvé un ajustement linéaire). Un facteur de correction a ensuite été calculé pour chaque saison. La figure 3F-9 contient un graphique

des concentrations de sulfates corrigées en fonction de la quantité de précipitations. Les figures 3F-10 à 3F-13 montrent les graphiques correspondant aux saisons individuelles.

La faible tendance à la baisse des concentrations de sulfates est plus évidente dans ces graphiques corrigés, en particulier dans le cas du printemps et de l'automne. Toutefois, dans ces deux cas, il semble que la diminution se soit produite avant 1984 et que les concentrations de sulfates aient été constantes depuis. Cette caractéristique a également été observée dans une analyse similaire de données provenant d'un échantillonnage en masse (sec et humide), effectué également à Dorset. L'analyse de ces données a déjà fait l'objet d'un rapport par Dillon et al.,(1988).

Les données sur les sulfates normalisées en fonction des précipitations présentent une caractéristique intéressante, en effet, les concentrations hivernales n'ont guère changé d'année en année, tandis que toutes les autres saisons indiquent une baisse. Cette baisse est conséquente, car elle s'est produite principalement au cours des deux ou trois premières années de la série. Comme il a déjà été mentionné, la transformation du SO_2 en sulfates est relativement limitée en hiver, ce qui suggère que les concentrations hivernales normalisées de sulfates présentées aux figures 3F-9 à 3F-11 correspondent essentiellement aux sulfates primaires lessivés. Cette composante n'a pas changé avec le temps et constitue la concentration de fond pour le site Dorset. Elle pourrait être attribuée à une ou plusieurs des sources suivantes :

- émissions anthropiques de sulfates primaires;
- sulfates de fond continentaux;
- émissions de sulfates dues au sel marin.

Il est difficile d'expliquer pourquoi les émissions de sulfates primaires demeurent inchangées dans le temps alors que les émissions de SO_2 ont changé et que l'apport dû au sel marin doit être faible à Dorset en raison de la distance qui sépare ce site de l'océan le plus proche. Nous en concluons donc que les concentrations de sulfates dans les précipitations en hiver observées à Dorset résultent du lessivage des aérosols de sulfates de fond continentaux.

Nitrates dans les précipitations

Le tableau 3F-2 résume l'analyse des concentrations moyennes saisonnières des nitrates dans les précipitations. Dans ce cas, l'expression de la tendance linéaire est la suivante:

$$NO_3^- = 0{,}5197 - 0{,}00266t$$

La diminution moyenne des concentrations des nitrates totaux est donc de 0,5 % par saison ou de 2 % par année. Cependant, puisque l'écart type d'estimation de la pente de la tendance est supérieur au coefficient, cette pente ne diffère pas de façon significative de zéro.

Le graphique de la série chronologique de toutes les données est présenté à la figure 3F-14. Le cycle saisonnier n'est pas aussi prononcé dans le cas des nitrates que pour les sulfates, mais les concentrations maximales ont généralement été observées en été et au printemps. Les graphiques des saisons individuelles (figures 3F-15 à 3F-18) indiquent une variabilité appréciable d'une année à l'autre, qui se traduit par un cycle saisonnier moins évident. Ces figures montrent en plus la hauteur des précipitations saisonnières; on peut ainsi constater clairement la corrélation inverse entre les concentrations et la quantité de précipitations.

Le graphique de la composante cyclique se trouve à la figure 3F-19. Il consiste en la superposition d'une cycle de deux ans et d'un cycle de quatre ans et indique un contraste évident avec la composante cyclique des sulfates présentée à la figure 3F-6. Cette différence suggère que la composante cyclique n'est pas liée à des facteurs météorologiques (sinon les similarités seraient plus grandes entre les concentrations des différents composés dans les précipitations). Cependant, il faudrait encore noter que la période globale du cycle se rapproche de la période couverte par les données disponibles et comporte donc une incertitude considérable.

La figure 3F-20 montre les composantes saisonnières. Obtenues à partir de moyennes calculées pour la période de 1981 à 1986, les valeurs de ces composantes sont : 0,85, pour l'hiver; 1,13, pour le printemps; 1,13, pour l'été; et 0,93, pour l'automne. Ces valeurs correspondent à celles de nombreuses autres études réalisées auparavant, selon lesquelles on trouve un variation beaucoup moins grande d'une saison à l'autre pour les concentrations de nitrates que pour celles des sulfates. Ces composantes confirment en outre l'allure qualitative de la figure 3F-14, laquelle indique que les concentrations tendent à être plus élevées au printemps et à l'été, et plus faibles en hiver.

La figure 3F-21 comprend le graphique de la composante aléatoire, qui, comme dans le cas des sulfates, indique une forte corrélation inverse avec la hauteur des précipitations. Un facteur de correction a été calculé pour les nitrates afin de tenir compte de la quantité de précipitations, comme celui qui a été décrit pour les sulfates; la figure 3F-22 présente le graphique des concentrations saisonnières de nitrates corrigées en fonction des précipitations. Les graphiques correspondants aux saisons particulières sont présentés dans les figures 3F-23 à 3F-26. L'ajustement d'une droite aux concentrations corrigées donne la même pente que celle qui a été calculée pour les données non corrigées, soit une diminution d'environ 2 % par année. Cependant, après ajustement, il demeure une part considérable de variation, et cette pente n'est pas significativement différente de zéro.

Concentrations atmosphériques du soufre total

Pour l'Ontario, les dépôts secs de composés acidifiants sont dérivés des concentrations atmosphériques mesurées et d'une vitesse de formation calculée. La présente section traite des distributions temporelles des concentrations atmosphériques de soufre total (anhydride sulfureux plus sulfates). Les distributions des dépôts secs seront semblables,

pourvu qu'aucun changement ne se soit produit dans la vitesse de formation au cours de la période d'étude. Cette exigence sera habituellement satisfaite si aucun changement majeur dans l'utilisation du sol n'a eu lieu dans le voisinage du site de mesure. Dorset répond à ce critère. On a utilisé les concentrations de soufre total pour cette analyse plutôt que d'analyser l'anhydride sulfureux et les sulfates séparément; car cette méthode correspond aux méthodes utilisées pour l'analyse des séries chronologiques des concentrations dans les précipitations. Les quantités de sulfates dans les précipitations signalées par le réseau APIOS incluent en effet l'apport dû à l'anhydride sulfureux, puisque aucune mesure n'a été prise pour déterminer séparément ce composé.

Les résultats de la décomposition figurent au tableau 3F-3.

La figure 3F-27 présente un graphique en fonction du temps des données originales. La caractéristique la plus distinctive de ce graphique est la valeur très élevée correspondant à l'hiver 1984. Cette valeur élevée découle de très fortes concentrations d'anhydride sulfureux; les concentrations de sulfates ont été semblables à celles qui ont été déterminées au cours d'autres hivers. Bien que cette concentration élevée soit une anomalie dans la série chronologique, elle n'est pas incorrecte. De grandes teneurs d'anhydride sulfureux ont également été échantillonnées à des sites voisins du réseau cumulatif ainsi que par le collecteur du réseau d'échantillonnage quotidien situé à Dorset.

Toutefois, dans le cadre de l'ajustement de la tendance, cette valeur élevée a été remplacée par la médiane de toutes les concentrations hivernales de soufre pour éviter l'effet excessif dû à une seule valeur. La droite représentant la tendance est montrée à la figure 3F -27; elle correspond à l'équation suivante :

$$S = 3{,}36 - 0{,}0712t$$

où t représente le temps exprimé en saison. Cette droite reflète une diminution de la concentration de soufre de 2,1 % par saison ou de 8,4 % par année. Les figures 3F-28 à 3F-31 présentent les graphiques en fonction du temps, pour chaque saison.

La composante cyclique comprend un cycle de deux ans d'amplitude variable, représenté à la figure 3F-32. On suppose qu'il reflète l'effet des facteurs climatologiques, car on note que l'analyse de données sur les précipitations révèle également un cycle de deux ans.

Le graphique de la composante saisonnière se trouve à la figure 3F-33. Les valeurs médianes de cette composante pour la période de 1981 à 1986 sont : 1,37, pour l'hiver; 0,99, pour le printemps; 0,76, pour l'été; et 0,83, pour l'automne. Ces résultats font contraste avec ceux des précipitations, lesquels indiquent des concentrations maximales en été. Ils reflètent des concentrations élevées d'anhydride sulfureux observées en hiver, lorsque les dépôts, les vents et les transformations chimiques sont les plus faibles.

La figure 3F-14 comprend un graphique de la composante aléatoire. Les valeurs de cette

composante varient entre 0,76 et 1,35; cet intervalle est plus petit que celui qui a été observé pour les précipitations (0,74 à 1,78).

Si l'on suppose que la composante cyclique représente bien les effets climatologiques, on peut effectuer une correction en divisant la série de données originales par la composante cyclique. La figure 3F-35 contient un graphique des concentrations de soufre corrigées. Les graphiques correspondant aux saisons individuelles sont présentés dans les figures 3F-36 à 3F-39.

La faible tendance décroissante des concentrations de soufre est beaucoup plus évidente dans ces graphiques corrigés. Tout comme dans l'analyse des données sur les précipitations, il semble que la diminution s'est produite avant 1984 et que les concentrations de soufre soient demeurées relativement constantes depuis.

Les très grandes concentrations atmosphériques de soufre total observées au cours de l'hiver 1984 ne se reflètent pas dans les concentrations observées dans les précipitations (voir figure 3F-2 ou figure 3F-11). Cette constatation est en accord avec le fait que l'on ne s'attend pas à ce que le SO_2 atmosphérique subisse un lessivage important en hiver.

Concentrations atmosphériques des nitrates totaux

Le tableau 3F-4 résume la décomposition de la série chronologique des concentrations atmosphériques des nitrates totaux, et la figure 3F-40 montre le graphique de la série chronologique des données originales. Comme pour les concentrations atmosphériques de soufre total, on a trouvé que les concentrations de nitrates étaient très élevées au cours de l'hiver 1984. Encore là, ces teneurs élevées ont été confirmées en comparant les données recueillies à Dorset avec les résultats obtenus à des sites voisins.

Étant donné que les concentrations observées pour l'hiver 1984 se comparaient davantage à d'autres concentrations saisonnières élevées (ex. : hiver 1982, 1983 et 1986) que dans le cas du soufre, elles ont été considérées pour l'ajustement de la tendance linéaire. On a trouvé que cette dernière correspondait à une diminution de 0,9 % par saison ou de 3,6 % par année. Toutefois, comme dans le cas des nitrates dans les précipitations, cette pente ne diffère pas significativement de zéro.

L'absence apparente de tendance dans les concentrations atmosphériques de nitrates est confirmé par les graphiques des concentrations saisonnières montrés aux figures 3F-41 à 3F-44. Dans le cas du printemps et de l'automne, les teneurs les plus élevées ont été observées en 1982. Une baisse substantielle a suivi jusqu'en 1983, puis, une hausse apparente au cours de chaque année subséquente. Dans le cas de l'hiver, il n'y a ni augmentation ni diminution systématiques.

La figure F-45 présente les graphiques des composantes cycliques, et les figures F-46 et F-47 montrent respectivement les composantes saisonnières et aléatoires. Un facteur

de correction climatologique a été calculé comme dans le cas du soufre, et les concentrations corrigées des nitrates totaux sont présentées à la figure F-48 (toutes les données) et aux figures F-49 à F-52 (saisons individuelles). Les données corrigées confirment les premières conclusions tirées au sujet du comportement des nitrates totaux en fonction du temps; il démontre une variabilité substantielle d'une année à l'autre mais aucune tendance à long terme.

En comparant les concentrations des nitrates totaux dans l'air (figure 3F-40) à leurs concentrations dans les précipitations (figure 3F-22), on constate une correspondance beaucoup plus grande que dans le cas des sulfates. Par exemple, la série chronologique montre des teneurs élevées pendant les hivers 1982 et 1984 ainsi qu'au cours de l'hiver et du printemps 1985. Cette concordance quoique quantitative, n'est pas inattendue, car le lessivage des nitrates atmosphériques par les précipitations, en plus d'être fonction de leurs concentrations, dépend aussi d'autres facteurs.

Les figures 3F-46 et 3F-47 présentent, respectivement, les graphiques des composantes cycliques et des composantes aléatoires, et les graphiques des concentrations corrigées par un facteur climatologique paraissent à la figure 3F-48.

Discussion

La variation en fonction du temps des concentrations de polluants dans l'air et dans les précipitations peut être due à un certain nombre de facteurs, notamment :

- aux changements dans la méthode d'échantillonnage;
- aux changements dans les émissions;
- aux changements dans les facteurs météorologiques qui influent sur le transport des polluants au site d'échantillonnage ou sur leur lessivage en cours de route ou à l'échantillonneur.

Les responsables du réseau cumulatif APIOS ont pris grand soin d'assurer la continuité de la cueillette des données en réduisant au minimum les changements de méthodes et en s'assurant que les nouvelles méthodes adoptées étaient tout à fait comparables aux méthodes déjà utilisées. Les tendances temporelles observées dans les analyses des données doivent donc être associées aux changements dans les émissions et à la variabilité météorologique. Comme il a été discuté auparavant, nous croyons qu'une partie importante de la variabilité météorologique se trouve représentée dans les tendances cycliques ou irrégulières. Nous pensons que la composante tendancielle reflète, au moins dans une certaine mesure, les changements dans les précurseurs des émissions survenus au cours de la période correspondante.

Le tableau 3.2.5 présente les émissions annuelles de SO_2 et de NO_x observées dans l'est de l'Amérique du Nord au cours de la période correspondant à l'analyse.

Dans le cas d'anhydride sulfureux, il est clair qu'il s'est produit une réduction systématique dans les émissions atteignant environ 3 % par année au cours de la période d'étude. Il faut la comparer aux tendances linéaires à la baisse des teneurs en composés du soufre constatées dans le cadre du présent ouvrage : 6 % par année (sulfates dans les précipitations) et 8 % par année (soufre total dans l'air). Du point de vue quantitatif, il existe des différences, mais ces différences ne surprennent pas, en raison des nombreux facteurs qui contribuent à la variabilité temporelle des concentrations atmosphériques de polluants. Néanmoins, la concordance qualitative est bonne, même lorsqu'on observe la baisse initiale relativement draconienne dans les émissions suivie par un changement plus graduel, lequel se reflète dans les observations présentées précédemment.

Dans le cas des oxydes d'azote, les émissions sont demeurées approximativement constantes au cours de la période d'étude. Cette observation aussi est conforme à l'analyse des données sur les concentrations, d'après laquelle aucune tendance n'a pu être décelée.

Les tendances observées dans le présent ouvrages corroborent les résultats d'autres études. Par exemple, Dillon et al (1988), à partir d'un ensemble différent de données, également recueillies à Dorset, a trouvé que les sulfates dans les précipitations ont diminué de 6 % par année, alors que les nitrates ont diminué de 1,6 % par année, mais avec une dispersion beaucoup plus grande.

À l'annexe 3D, nous avons trouvé que les concentrations de sulfates dans les précipitations ont subi une baisse avec le temps à Chalk River, situé à environ 150 kilomètres de Dorset. Aucune tendance linéaire n'a été ajustée aux données, mais le taux global de changement a été d'environ 5 % par année. En outre, aucun changement significatif n'a été observé dans les concentrations de nitrates dans l'air ou dans les précipitations au cours de la période d'étude.

À l'annexe 3D, les données sur les concentrations atmosphériques des sulfates et d'anhydride sulfureux ont été analysées séparément. Pour les sulfates, aucun changement à long terme significatif n'a été observé à Chalk River, mais les concentrations d'anhydride sulfureux ont diminué en moyenne d'environ 7 % par année. Puisque les concentrations d'anhydride sulfureux ont été constamment beaucoup plus élevées que celles des sulfates à Chalk River, le taux de diminution correspondant du soufre total dans l'air était également d'environ 7 % par année, soit en concordance avec le résultat de 8 % par année obtenu pour le présent ouvrage.

Fay et al (1989) ont étudié les tendances temporelles des sulfates et des nitrates dans l'est de l'Amérique du Nord en utilisant des données provenant de 17 sites où les

données sont recueillies depuis longtemps. Ils ont trouvé des tendances linéaires décroissantes de 6,4 % par année dans le cas des sulfates et de 0,6 % par année pour les nitrates à Chalk River.

Conclusions

Voici les principales conclusions tirées de l'étude.

- Les concentrations de sulfates dans les précipitations mesurées à Dorset (Ontario) indiquent une tendance décroissante d'environ 6 % par année de 1981 à 1986. Cette tendance est plus évidente dans les données du printemps et de l'automne, après qu'elles ont été corrigées pour tenir compte de leur dépendance envers la quantité de précipitations.

- Les concentrations atmosphériques de soufre ont diminué d'environ 8 % par année au cours de la même période.

- Les concentrations de nitrates dans l'air et dans les précipitations n'ont pas révélé de changement significatif au cours de cette période.

- Ces changements dans les concentrations des polluants sont conformes aux changements dans les émissions des précurseurs survenus au cours de la période d'étude.

- À partir de la présente analyse, on a pu effectuer un ajustement pour tenir compte de l'effet de la quantité de précipitations sur la concentration de polluants. Cet ajustement a permis de déceler plus clairement la tendance des sulfates en fonction du temps.

Tableau 3F-1

Analyse des séries chronologiques saisonnières: Données sur les sulfates provenant de Dorset

Saison	Sulfates (mg/L)	Tendance (T)	Composante Cyclique (C)	Composante Saisonnière (S)	Composante Irrégulière (I)
W81	1.62	3.27	0.96	0.50	1.04
S81	4.77	3.22	0.88	1.13	1.45
S81	4.69	3.17	0.93	1.38	1.17
A81	2.50	3.12	0.93	0.87	0.97
W82	1.41	3.06	0.98	0.50	0.91
S82	3.96	3.01	1.09	1.13	1.08
S82	3.23	2.96	1.07	1.38	0.74
A82	2.50	2.91	1.01	0.87	0.92
W83	1.86	2.86	1.11	0.50	1.21
S83	2.72	2.81	1.02	1.13	0.81
S83	3.97	2.76	1.04	1.38	1.02
A83	2.01	2.70	1.01	0.87	1.02
W84	2.05	2.65	0.97	0.50	1.54
S84	2.86	2.60	1.03	1.13	1.98
S84	3.18	2.55	0.95	1.13	0.90
A84	2.70	2.50	1.00	0.87	1.24
W85	1.21	2.45	1.02	0.50	0.88
S85	2.54	2.40	0.97	1.13	0.96
S85	3.42	2.34	0.95	1.38	1.13
A85	2.33	2.29	0.91	0.87	1.30
W86	1.77	2.24	0.86	0.50	1.78
S86	2.92	2.19	0.92	1.13	1.30
S86	2.50	2.14	0.97	1.38	0.86
A86	1.64	2.09			

Tableau 3F-2

Analyse des séries chronologiques saisonnières:
Concentrations des nitrates totaux dans les précipitations: Dorset

Saison	Nitrates (mg/L)	Tendance (T)	Composante Cylique (C)	Composante Saisonnière (S)	Composante Irrégulière (I)
S81	0.504	0.512	0.99	0.43	2.32
A81	0.452	0.509	1.06	0.41	2.07
W82	0.560	0.506	1.09	0.50	2.02
S82	0.697	0.504	1.04	0.57	2.25
S82	0.395	0.501	1.04	0.43	1.84
A82	0.423	0.498	0.98	0.41	2.23
W83	0.441	0.496	0.85	0.50	2.03
S83	0.417	0.493	0.91	0.57	1.69
S83	0.506	0.490	0.89	0.43	2.64
A83	0.386	0.488	1.00	0.41	1.99
W84	0.641	0.484	1.06	0.50	2.53
S84	0.519	0.482	0.99	0.57	1.83
S84	0.372	0.480	1.05	1.43	1.79
A84	0.481	0.477	0.95	0.41	2.57
W85	0.445	0.474	0.98	0.50	1.96
S85	0.555	0.472	1.03	0.57	2.15
S85	0.460	0.469	0.97	0.43	2.24
A85	0.365	0.466	1.13	0.41	1.74
W86	0.724	0.464	1.15	0.50	2.70
S86	0.584	0.461	1.09	0.57	2.00
S86	0.337	0.458	1.08	0.43	2.00

Tableau 3F-3

Analyse des séries chronologiques saisonnières:
Concentrations atmosphériques de soufre total: Dorset

Saison	Sulfates ($\mu g/m^3$)	Tendance (T)	Composante Cyclique (C)	Composante Saisonnière (S)	Composante Irrégulière (I)
A81	3.10	3.29			
W82	4.15	3.22			
S82	4.26	3.15	1.06	0.99	1.29
S82	1.85	3.08	1.04	0.76	0.76
A82	2.48	3.01	0.99	0.83	1.00
W83	3.34	2.93	0.85	1.37	0.92
S83	2.35	2.86	0.95	0.99	0.92
S83	2.69	2.79	0.94	0.76	1.35
A83	2.12	2.72	1.42	0.83	0.95
W84	8.25	2.65	1.41	1.37	2.29
S84	1.91	2.58	1.42	0.99	0.77
S84	2.39	2.51	1.43	0.76	1.35
A84	1.83	2.44	0.92	0.83	0.98
W85	2.82	2.36	1.00	1.37	0.94
S85	2.45	2.29	0.97	0.99	1.11
S85	1.80	2.22	1.07	0.76	1.00
A85	2.41	2.15	1.22	0.83	1.13
W86	3.80	2.08	1.18	1.37	1.11
S86	1.84	2.01	1.18	0.99	0.80
S86	1.44	1.94	1.11	0.76	0.96
A86	1.54	1.87			

Tableau 3F-4.

Analyse des séries chronologiques saisonnières:
Concentrations atmosphériques des nitrates totaux: Dorset

Saison	Nitrates ($\mu g/m^3$)	Tendance (T)	Composante Cyclique (C)	Composante Saisonnière (S)	Composante Irrégulière (I)
W82	0.49	0.412			
S82	0.48	0.409	1.10	0.85	0.75
S82	0.28	0.405	1.10	0.86	1.44
A82	0.53	0.401	0.94	1.33	0.93
W83	0.48	0.397	0.95	0.94	0.63
S83	0.21	0.393	0.82	0.85	0.93
S83	0.27	0.390	0.94	0.86	0.99
A83	0.31	0.386	1.00	1.33	1.30
W84	0.66	0.382	1.01	0.94	0.78
S84	0.28	0.378	1.01	0.85	0.90
S84	0.28	0.374	0.81	0.86	0.99
A84	0.29	0.371	0.93	1.33	0.81
W85	0.35	0.367	0.96	0.94	1.43
S85	0.45	0.363	0.97	0.85	0.98
S85	0.30	0.359	1.11	0.86	0.87
A85	0.29	0.355	1.10	1.33	1.02
W86	0.53	0.352	1.09	0.94	1.21
S86	0.43	0.348	1.14	0.85	0.89
S86	0.26	0.344			
A86	0.35	0.340			

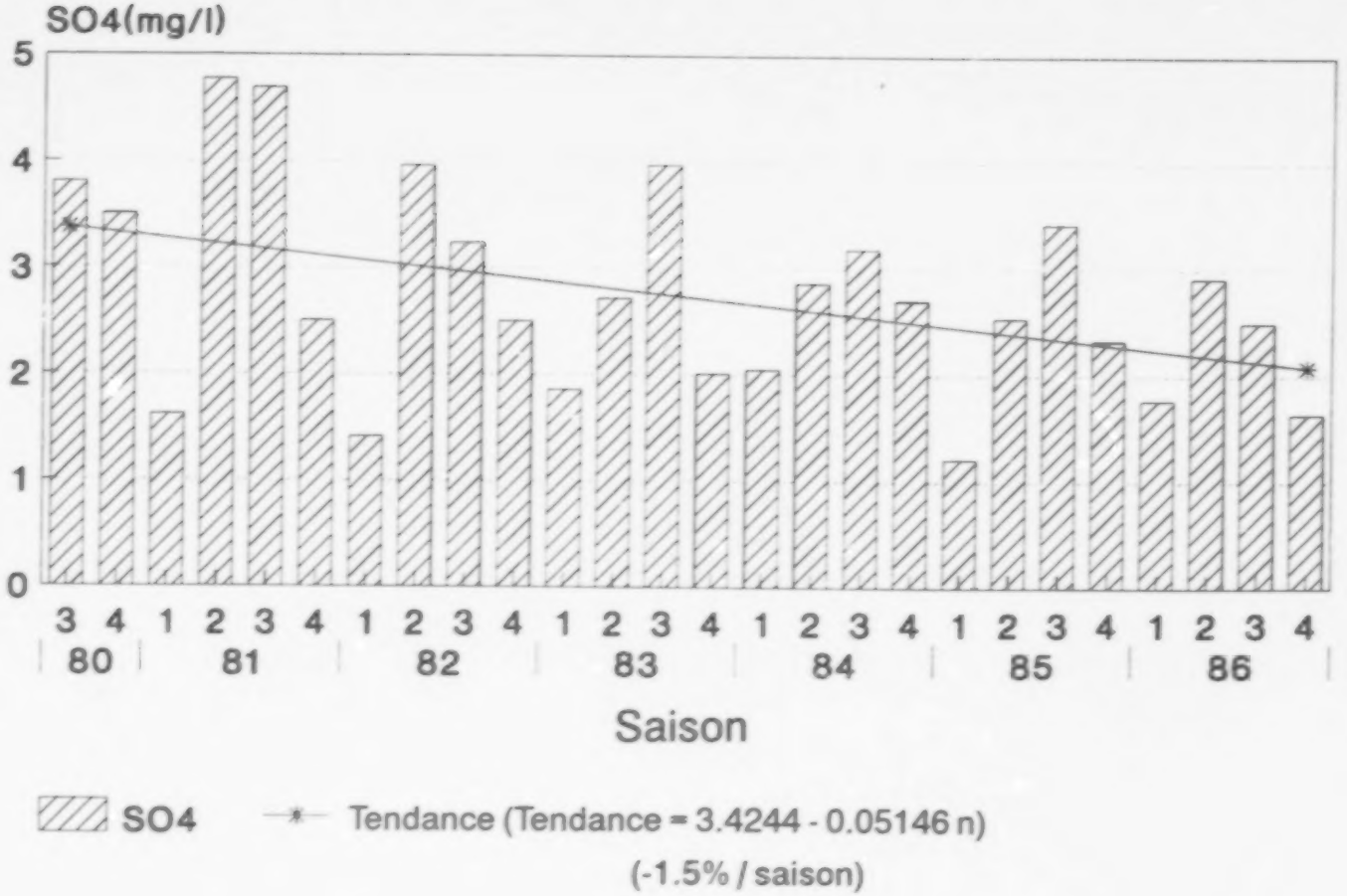


Figure 3F-1 Concentrations saisonnières des sulfates dans les précipitations, à Dorset (Ontario) : 1980 à 1986.

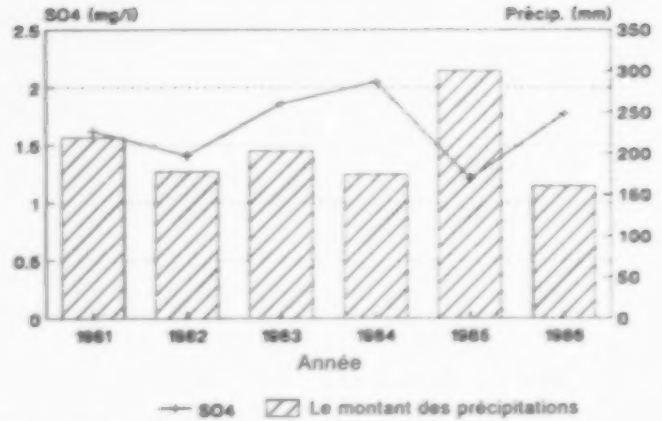


Figure 3F-2 Concentrations des sulfates dans les précipitations en hiver, à Dorset (Ontario): 1981 à 1986.

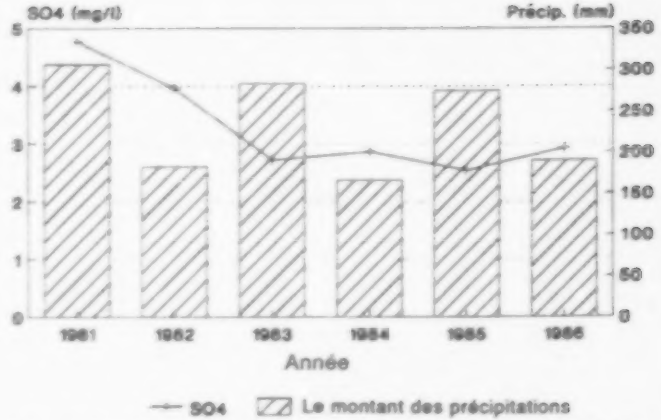


Figure 3F-3 Concentrations des sulfates dans les précipitations au printemps, à Dorset (Ontario): 1981 à 1986.

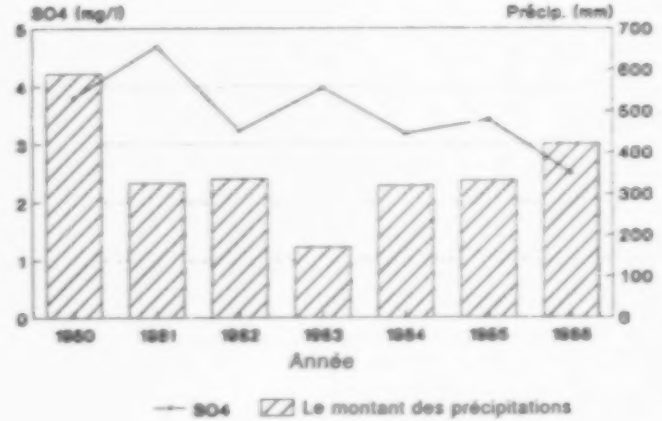


Figure 3F-4 Concentrations des sulfates dans les précipitations en été, à Dorset (Ontario): 1980 à 1986.

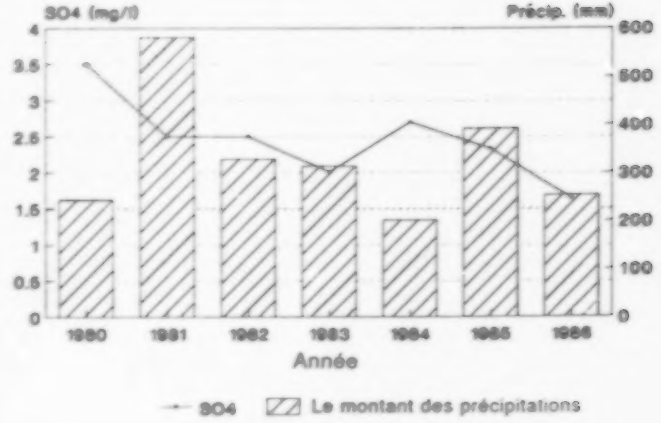


Figure 3F-5 Concentrations des sulfates dans les précipitations en automne, à Dorset (Ontario): 1980 à 1986.

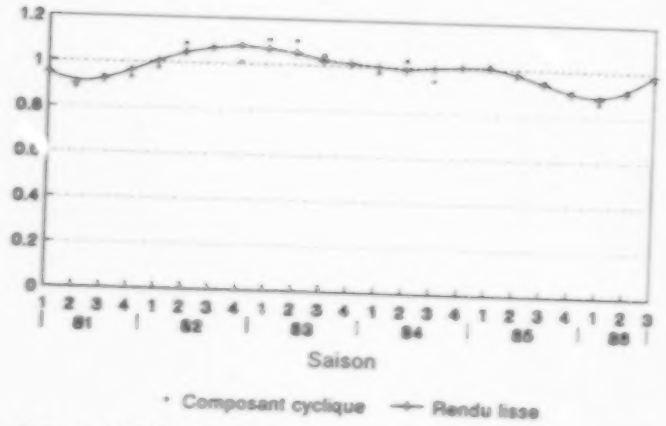


Figure 3F-6 Composante cyclique des concentrations saisonnières dans les précipitations, à Dorset (Ontario): 1981 à 1986.

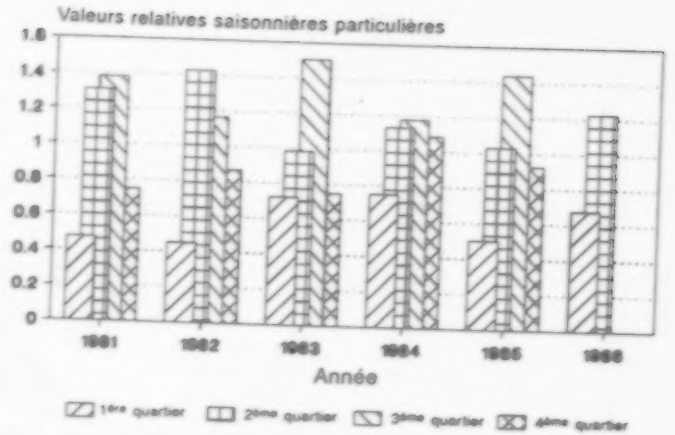


Figure 3F-7 Valeurs relatives saisonnières particulières des sulfates dans les précipitations, par trimestre, à Dorset (Ontario): 1981 à 1986.

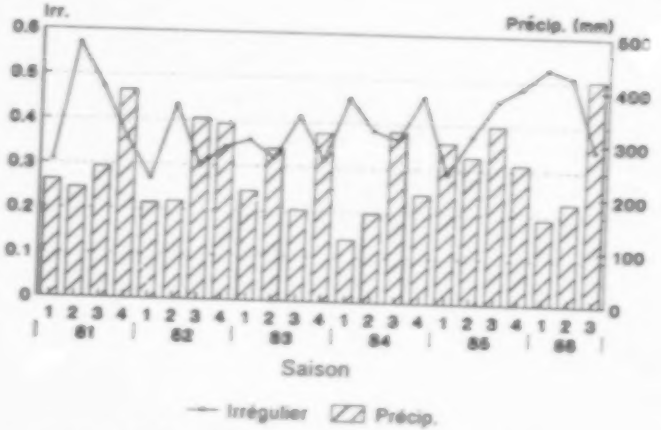


Figure 3F-8 Composante irrégulière des concentrations saisonnières des sulfates dans les précipitations en regard de la quantité de précipitations, à Dorset (Ontario): 1981 à 1986.

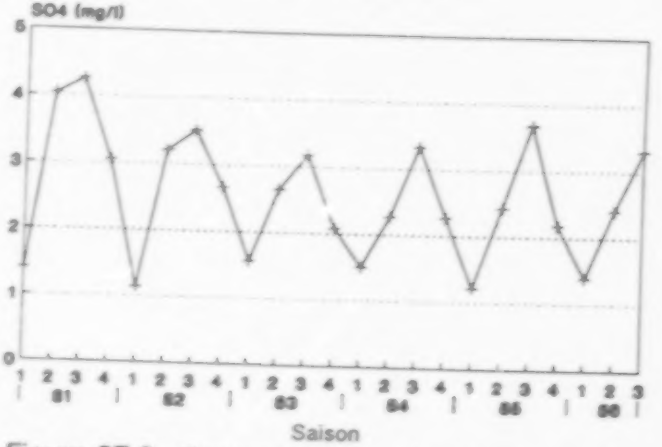


Figure 3F-9 Concentrations saisonnières des sulfates corrigées en fonction de la quantité de précipitations, à Dorset (Ontario): 1981 à 1986.

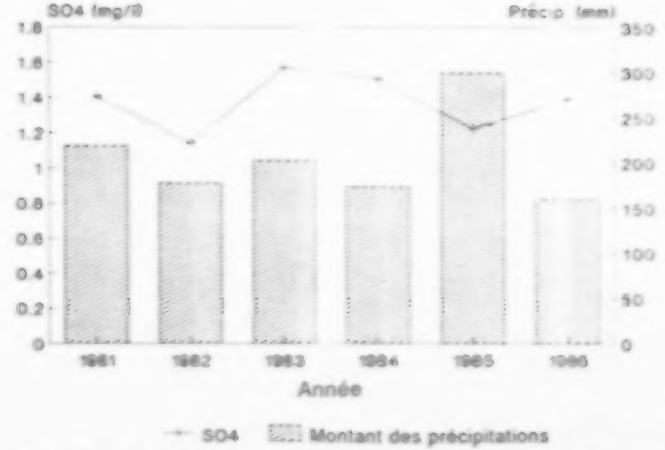


Figure 3F-10 Concentrations des sulfates en hiver corrigées en fonction de la quantité de précipitations, à Dorset (Ontario): 1981 à 1986.

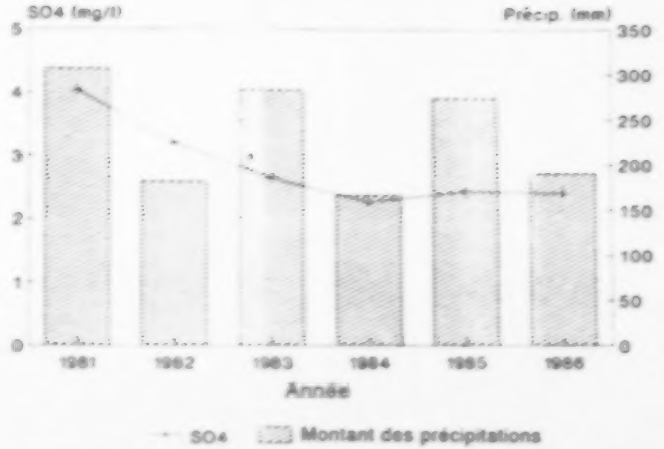


Figure 3F-11 Concentrations des sulfates au printemps corrigées en fonction de la quantité de précipitations, à Dorset (Ontario): 1981 à 1986.

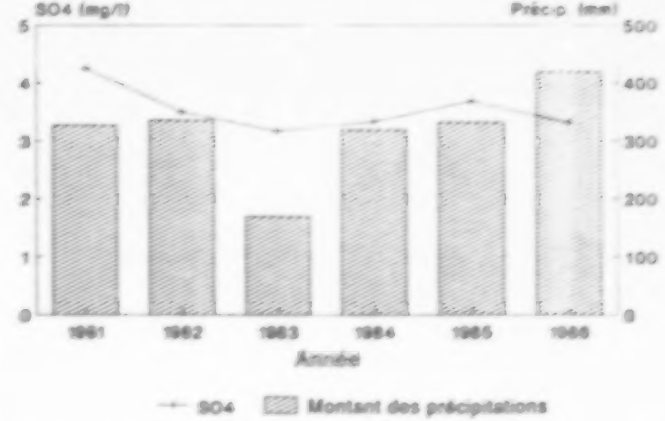


Figure 3F-12 Concentrations des sulfates en été corrigées en fonction de la quantité de précipitations, à Dorset (Ontario): 1981 à 1986.

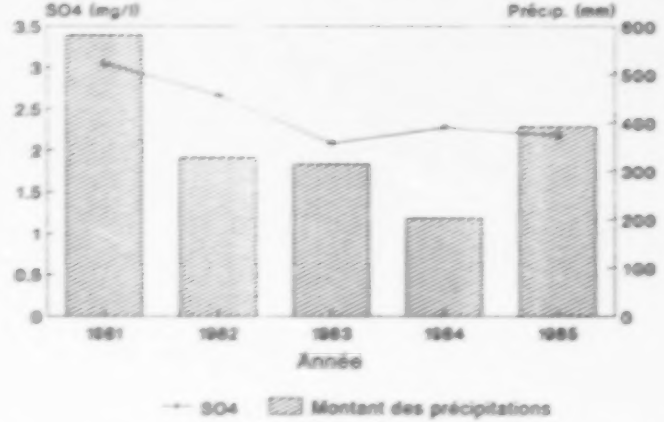


Figure 3F-13 Concentrations des sulfates en automne corrigées en fonction de la quantité de précipitations, à Dorset (Ontario): 1981 à 1985.

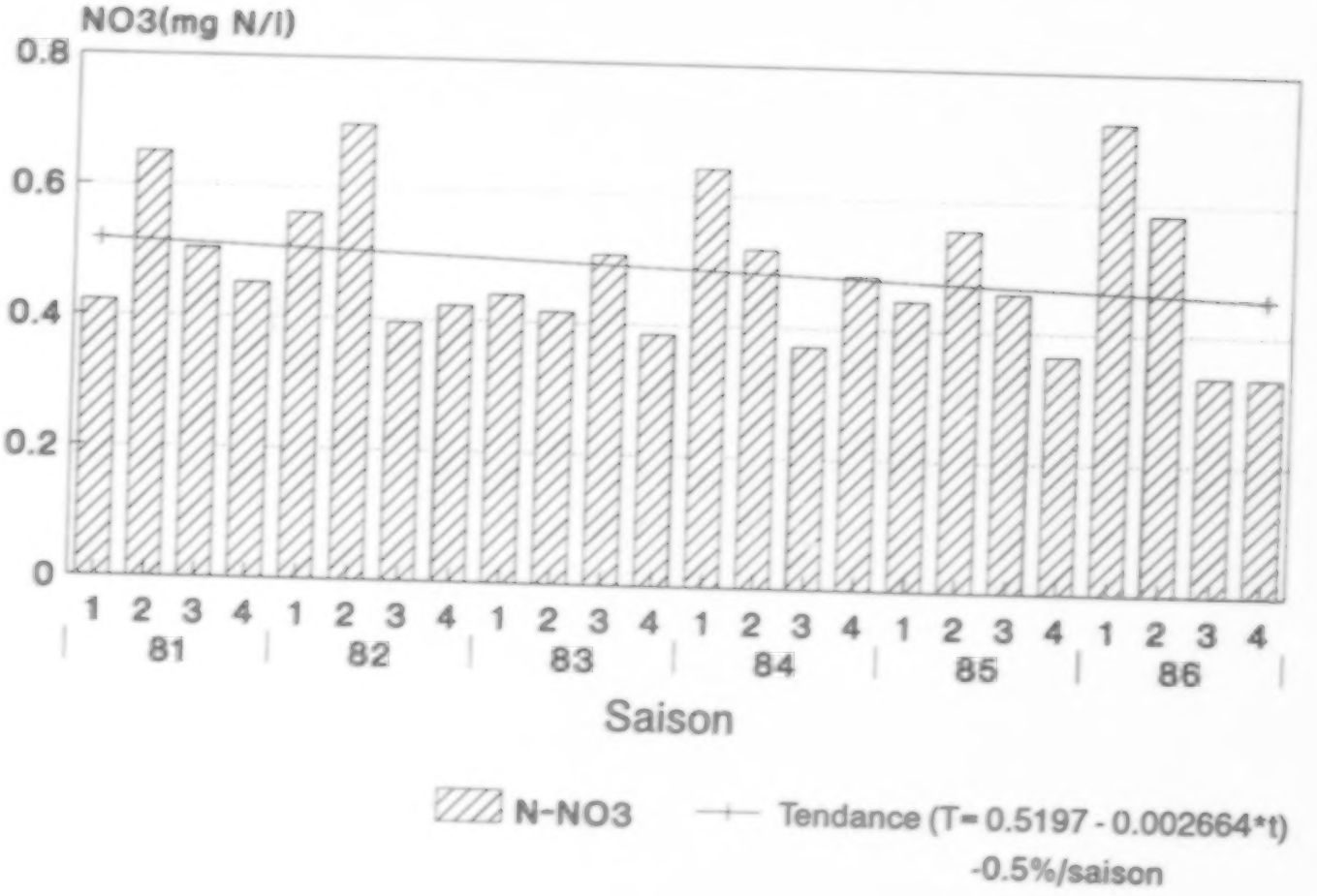


Figure 3F-14 Concentrations saisonnières de $N\text{-}NO_3^-$ dans les échantillons de précipitations, à Dorset (Ontario) : 1981 à 1986.

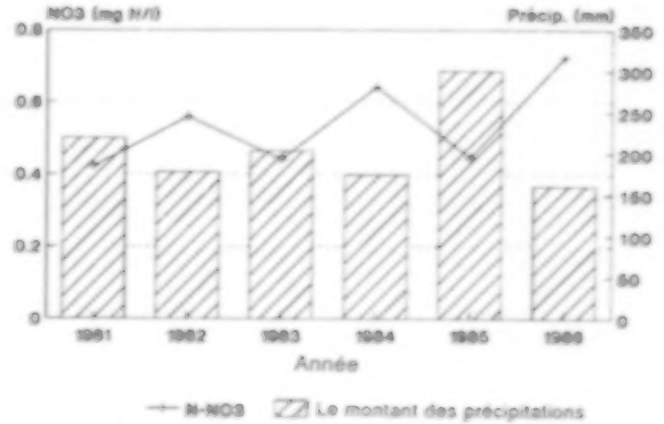


Figure 3F-15 Concentrations de $N\text{-}NO_3^-$ en hiver dans les échantillons de précipitations, à Dorset (Ontario): 1981 à 1986.

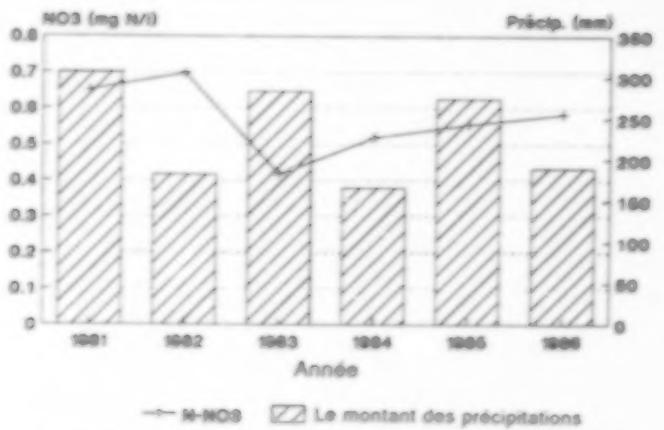


Figure 3F-16 Concentrations de $N\text{-}NO_3^-$ au printemps dans les échantillons de précipitations, à Dorset (Ontario): 1981 à 1986.

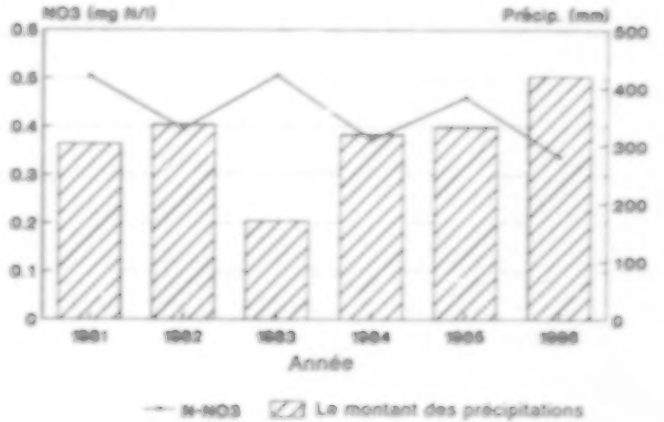


Figure 3F-17 Concentrations de $N\text{-}NO_3^-$ en été dans les échantillons de précipitations, à Dorset (Ontario): 1981 à 1986.

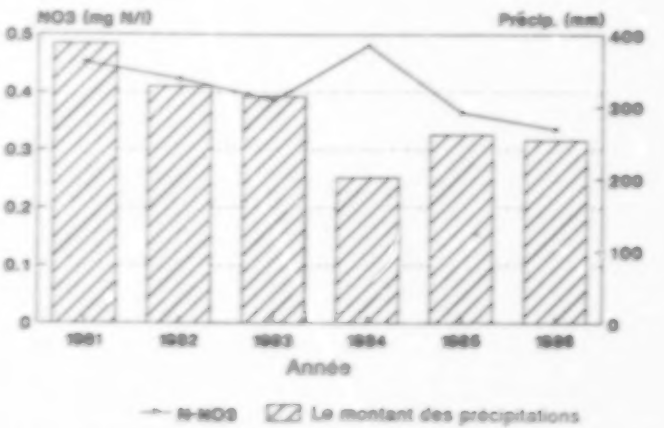


Figure 3F-18 Concentrations de $N\text{-}NO_3^-$ en automne dans les échantillons de précipitations, à Dorset (Ontario): 1981 à 1986.

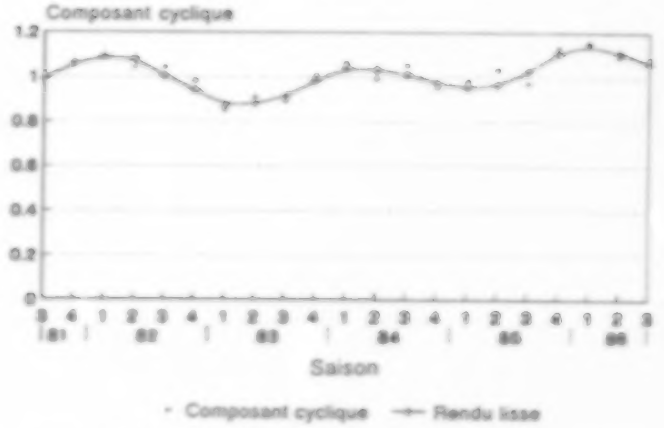


Figure 3F-19 Composante cyclique des concentrations saisonnières de $N\text{-}NO_3^-$ à Dorset (Ontario): 1981 à 1986.

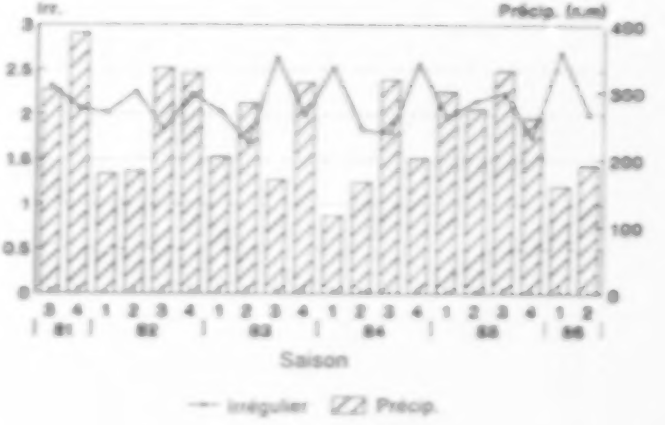


Figure 3F-21 Composante irrégulière des concentrations saisonnières des $N\text{-}NO_3^-$ en regard de la quantité de précipitations, à Dorset (Ontario): 1981 à 1986.

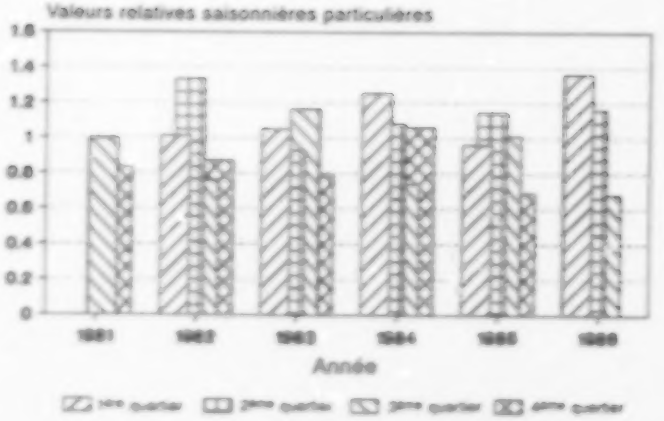


Figure 3F-20 Valeurs relatives saisonnières particulières des $N\text{-}NO_3^-$ dans les précipitations, par trimestres, à Dorset (Ontario): 1981 à 1986.

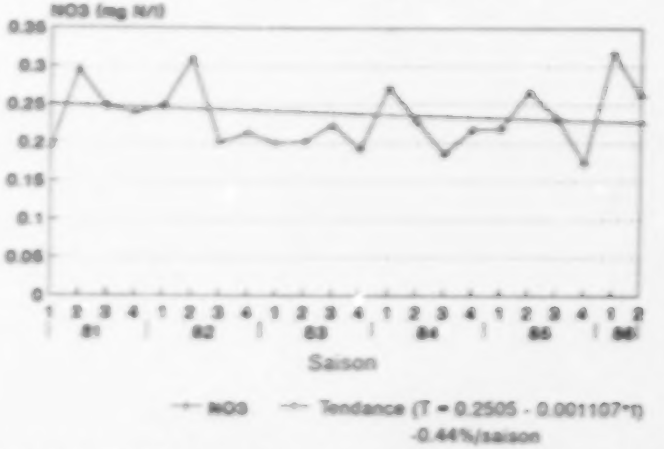


Figure 3F-22 Concentrations saisonnières des $N\text{-}NO_3^-$ corrigées en fonction de la quantité de précipitations, à Dorset (Ontario): 1981 à 1986.

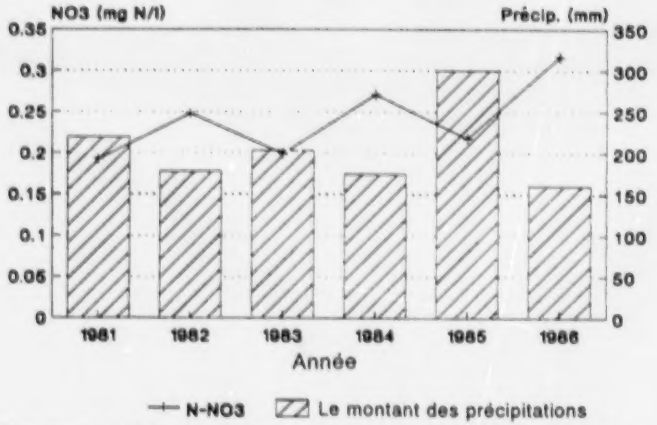


Figure 3F-23 Concentrations des N-NO_3^- en hiver corrigées en fonction de la quantité de précipitations, à Dorset (Ontario): 1981 à 1986.

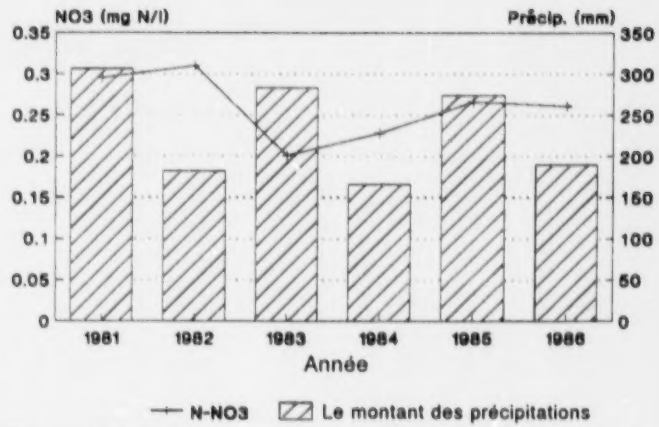


Figure 3F-24 Concentrations des N-NO_3^- au printemps corrigées en fonction de la quantité de précipitations, à Dorset (Ontario): 1981 à 1986.

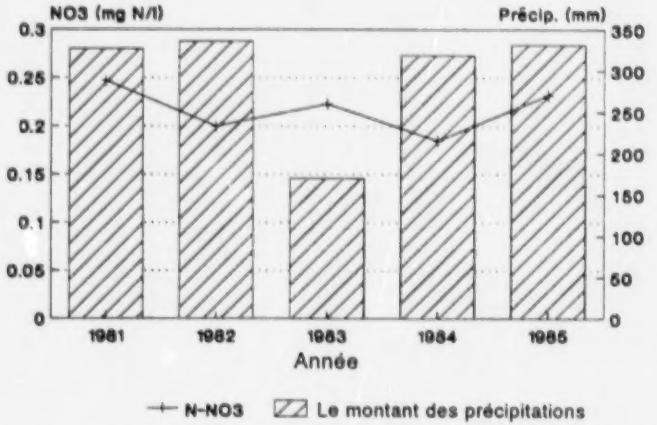


Figure 3F-25 Concentrations des N-NO_3^- en été corrigées en fonction de la quantité de précipitations, à Dorset (Ontario): 1981 à 1985.

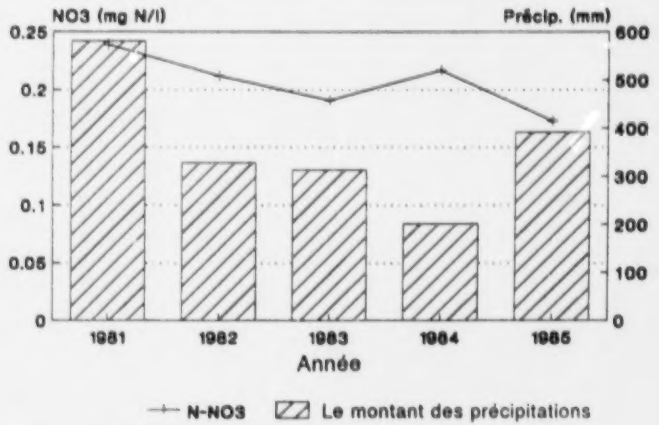


Figure 3F-26 Concentrations des N-NO_3^- en automne corrigées en fonction de la quantité de précipitations, à Dorset (Ontario): 1981 à 1985.

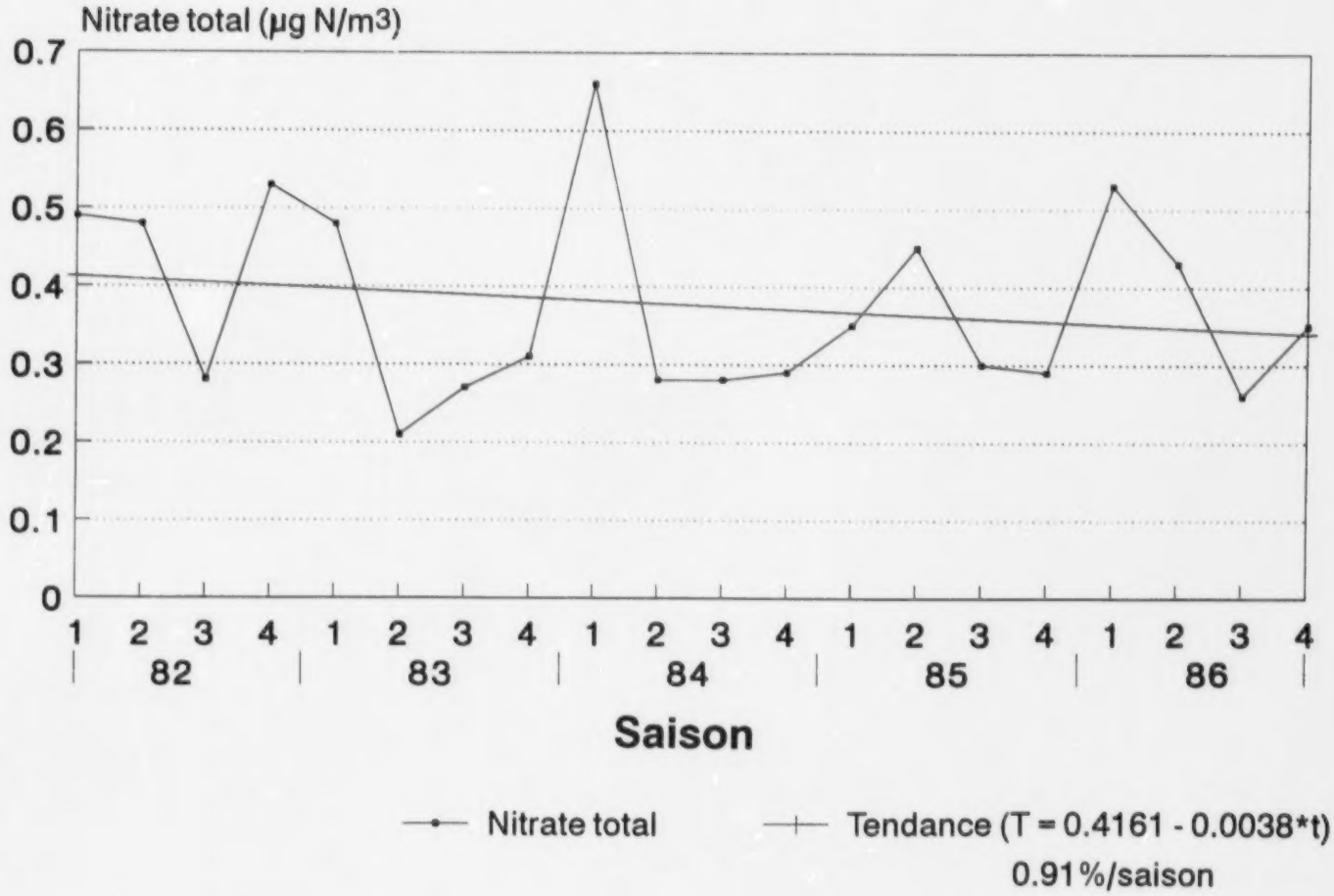


Figure 3F-27 Concentrations atmosphériques saisonnières de tout le soufre, à Dorset (Ontario) : 1981 à 1986.

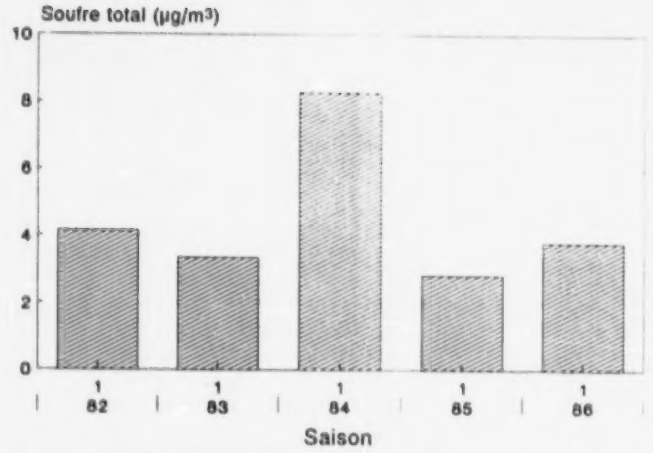


Figure 3F-28 Concentrations atmosphériques de tout le soufre, en hiver, à Dorset (Ontario): 1981 à 1986.

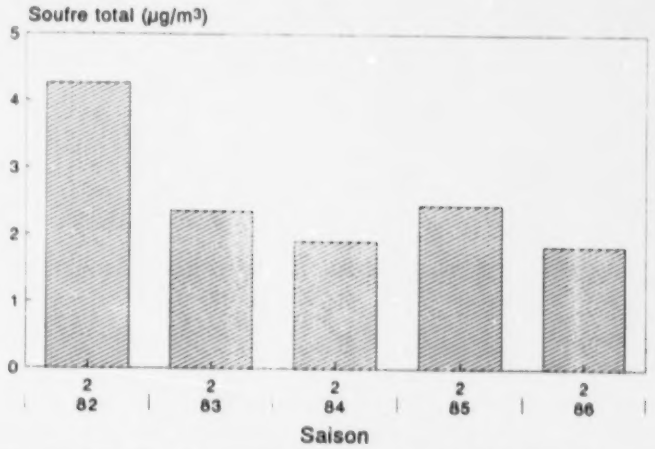


Figure 3F-29 Concentrations atmosphériques de tout le soufre, au printemps, à Dorset (Ontario): 1982 à 1986.

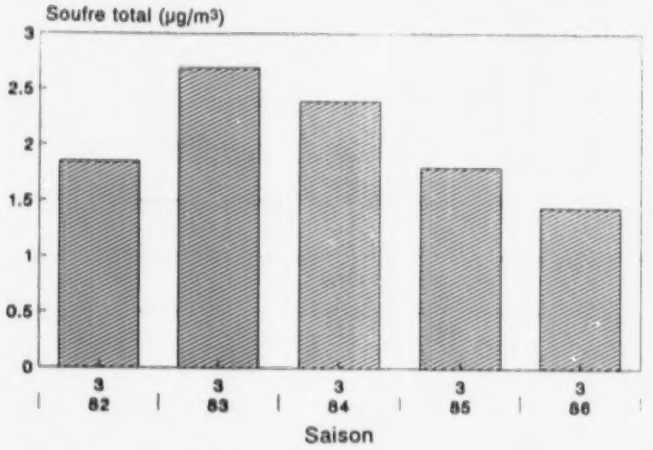


Figure 3F-30 Concentrations atmosphériques de tout le soufre, en été, à Dorset (Ontario): 1982 à 1986.

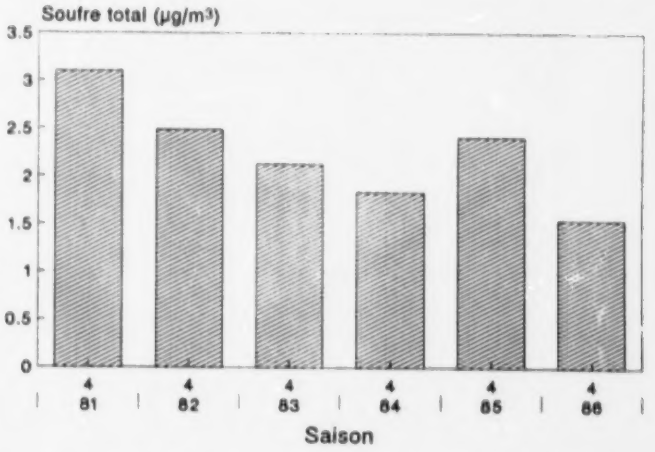


Figure 3F-31 Concentrations atmosphériques de tout le soufre, en automne, à Dorset (Ontario): 1981 à 1986.

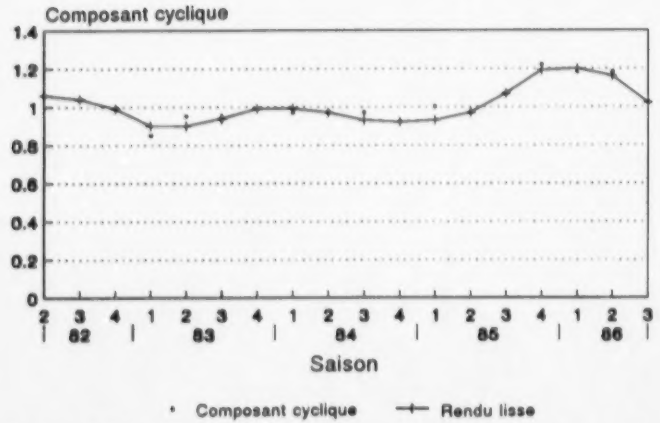


Figure 3F-32 Valeurs relatives saisonnières particulières des concentrations atmosphériques saisonnières de tout le soufre, à Dorset (Ontario): 1982 à 1986.

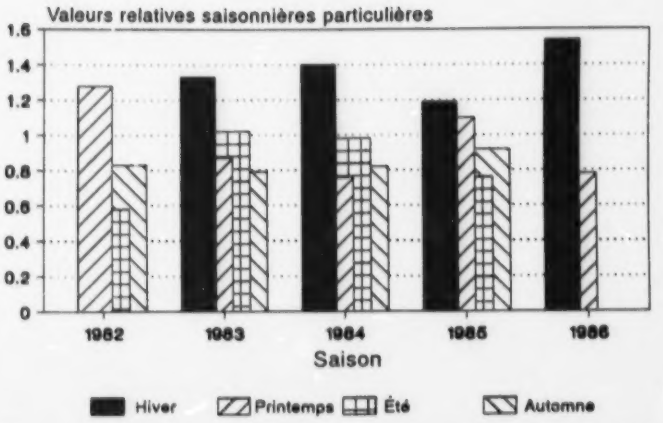


Figure 3F-33 Composante cyclique des concentrations atmosphériques saisonnières de tout le soufre, à Dorset (Ontario): 1982 à 1986.

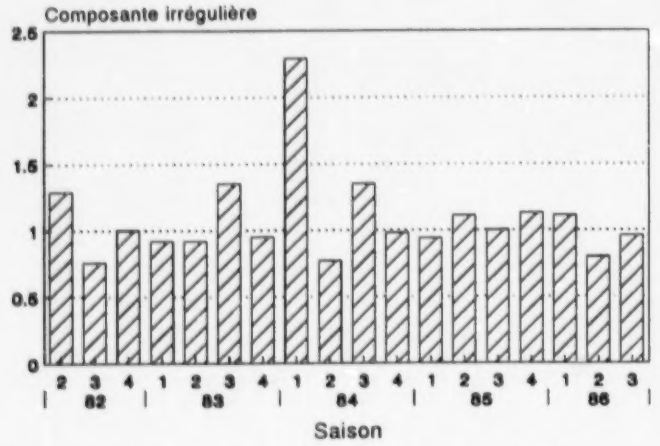


Figure 3F-34 Composantes irrégulières des concentrations atmosphériques saisonnières de tout le soufre, à Dorset (Ontario): 1982 à 1986.

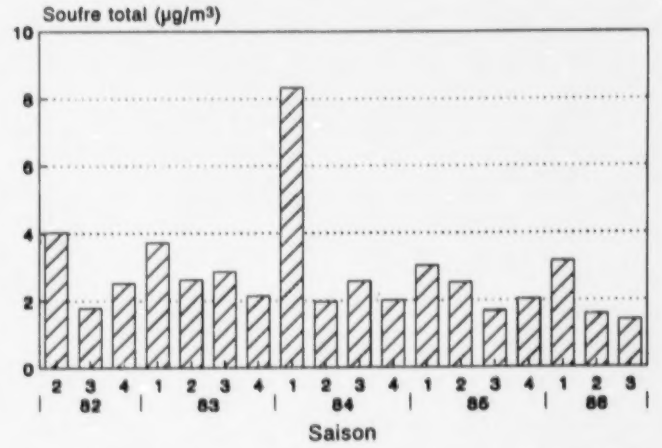


Figure 3F-35 Concentrations atmosphériques saisonnières de tout le soufre corrigées en fonction d'un facteur climatologique, à Dorset (Ontario): 1982 à 1986.

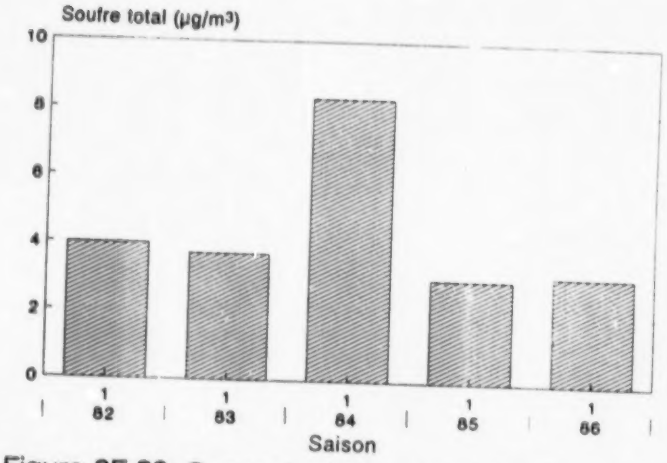


Figure 3F-36 Concentrations atmosphériques de tout le soufre en hiver corrigées en fonction d'un facteur climatologique, à Dorset (Ontario): 1982 à 1986.

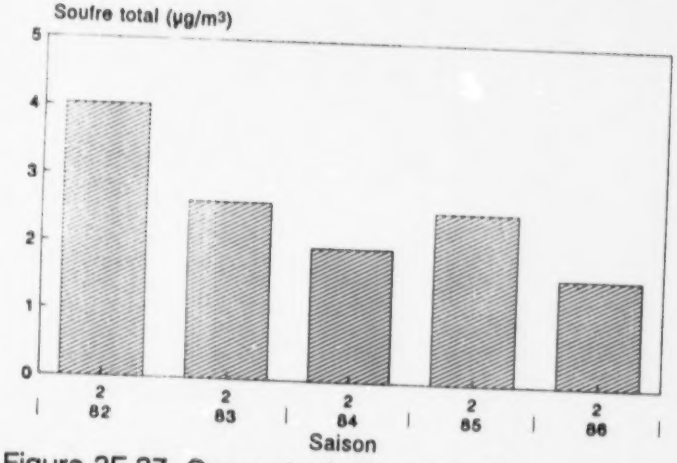


Figure 3F-37 Concentrations atmosphériques de tout le soufre au printemps corrigées en fonction d'un facteur climatologique, à Dorset (Ontario): 1982 à 1986.

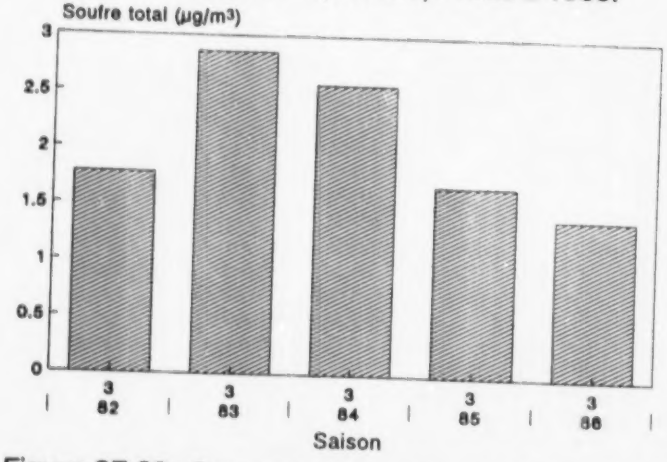


Figure 3F-38 Concentrations atmosphériques de tout le soufre en été corrigées en fonction d'un facteur climatologique, à Dorset (Ontario): 1982 à 1986.

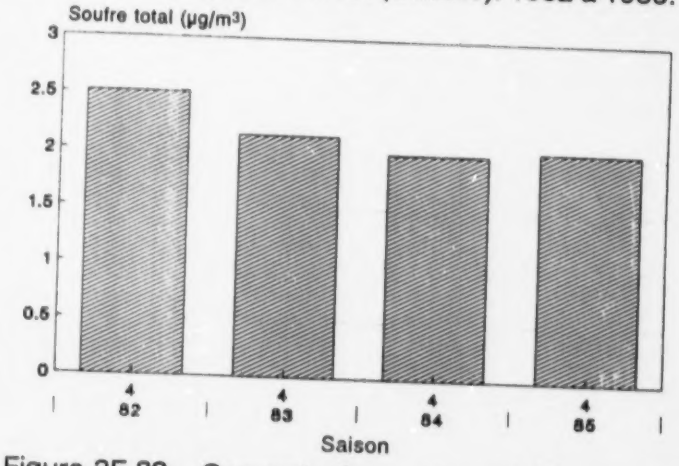


Figure 3F-39 Concentrations atmosphériques de tout le soufre en hiver corrigées en fonction d'un facteur climatologique, à Dorset (Ontario): 1982 à 1985.

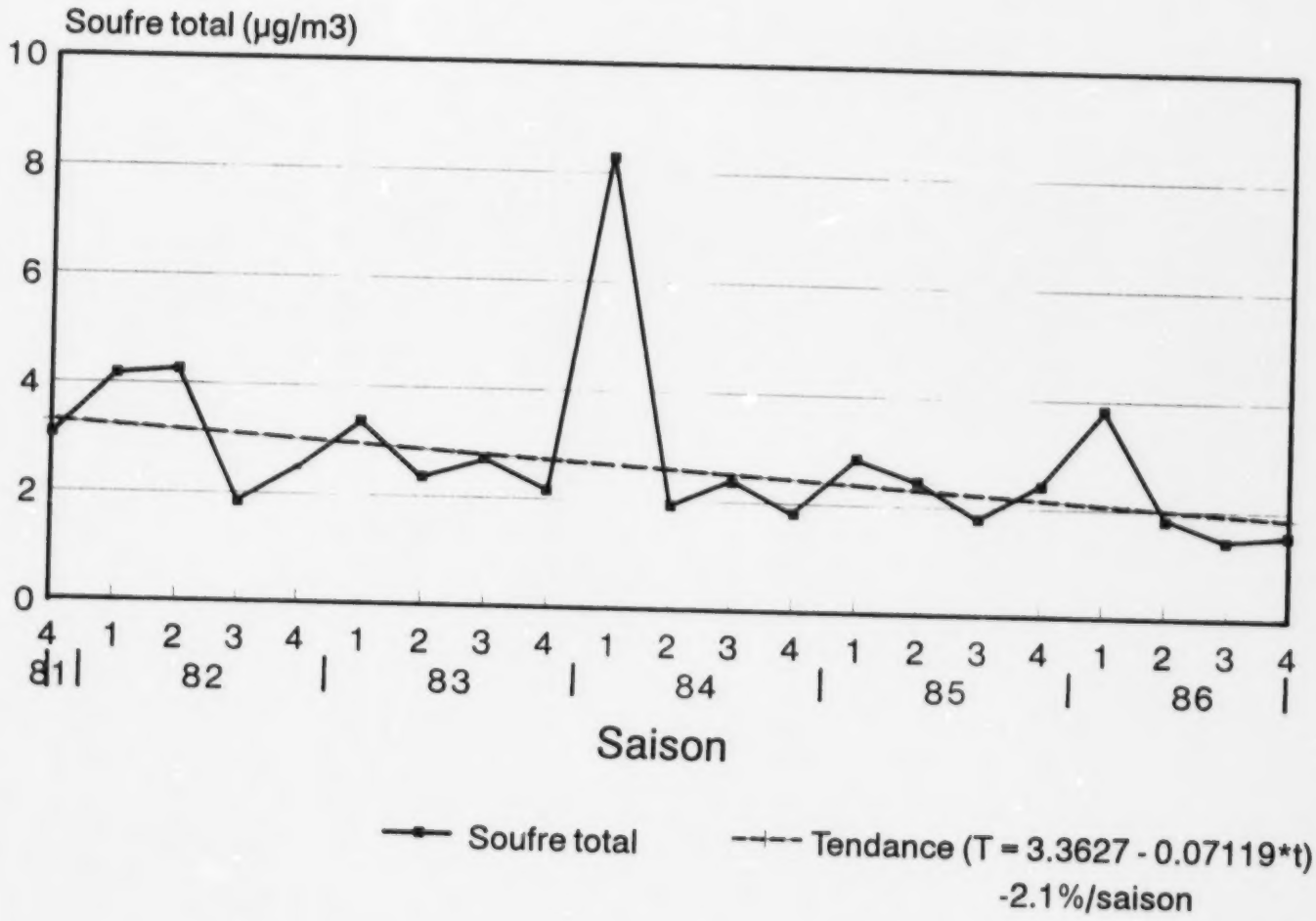


Figure 3F-40 Concentrations atmosphériques saisonnières de tous les nitrates, à Dorset (Ontario) : 1982 à 1986.

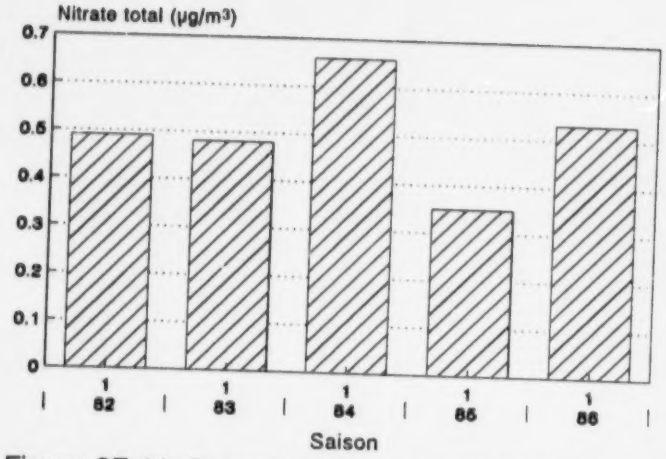


Figure 3F-41 Concentrations atmosphériques de tous les nitrates en hiver, à Dorset (Ontario): 1982 à 1986.

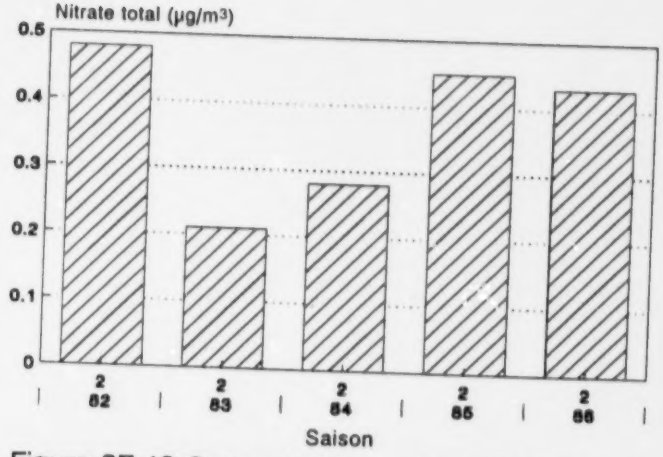


Figure 3F-42 Concentrations atmosphériques de tous les nitrates au printemps, à Dorset (Ontario): 1982 à 1986.

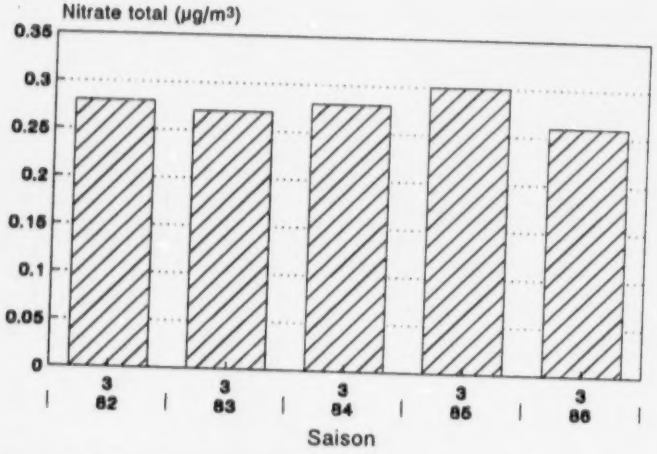


Figure 3F-43 Concentrations atmosphériques de tous les nitrates en été, à Dorset (Ontario): 1982 à 1986.

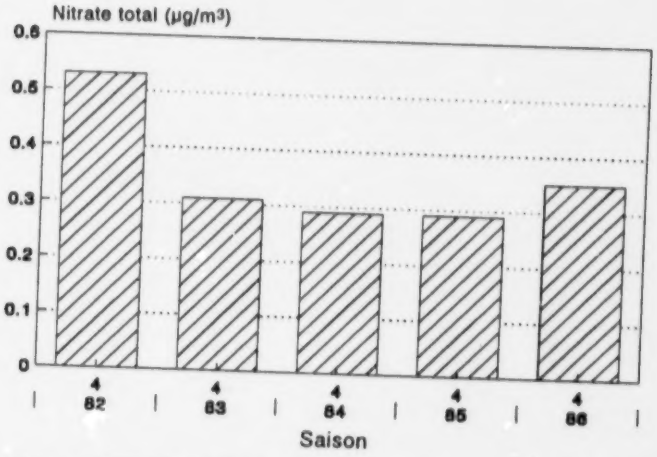


Figure 3F-44 Concentrations atmosphériques de tous les nitrates en automne, à Dorset (Ontario): 1982 à 1986.

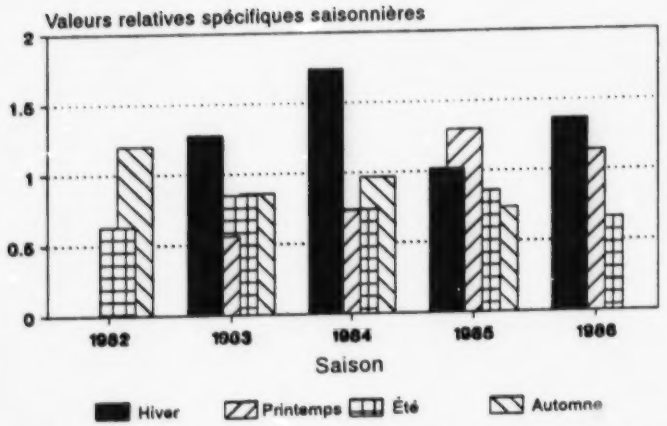


Figure 3F-45 Valeurs relatives saisonnières particulières des concentrations atmosphérqiques saisonnières de tous les nitrates, à Dorset (Ontario): 1982 à 1986.

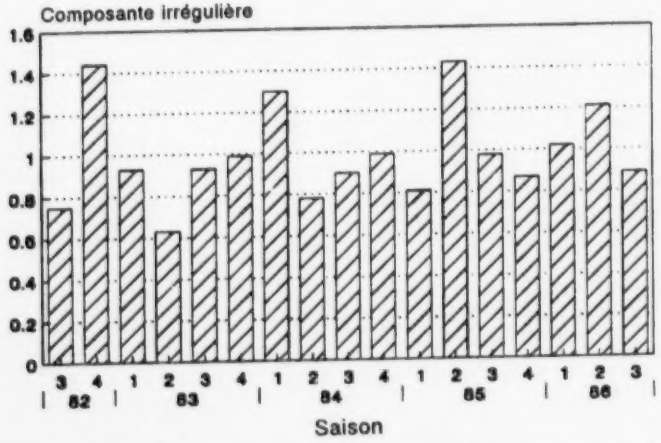


Figure 3F-47 Composantes irrégulières à Dorset (Ontario): 1982 à 1986.

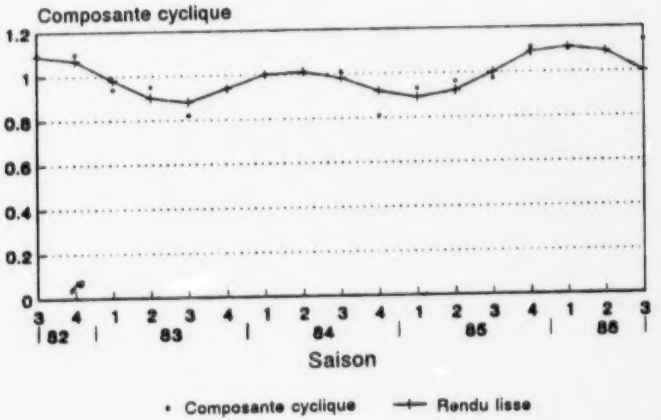


Figure 3F-46 Composantes cycliques à Dorset (Ontario): 1982 à 1986.

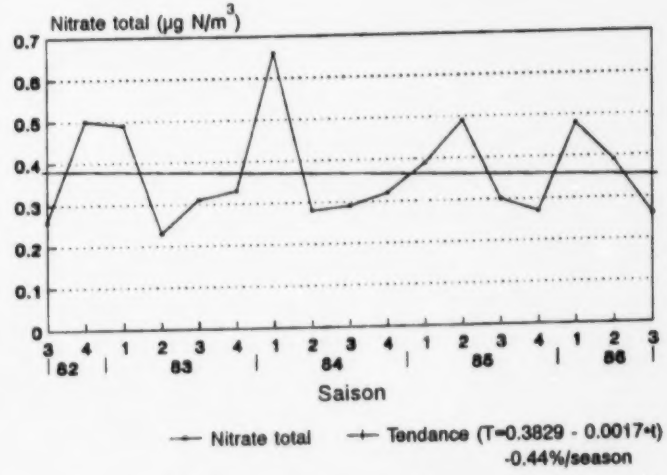


Figure 3F-48 Concentrations atmosphériques de tous les nitrates corrigées en fonction d'un facteur climatologique, à Dorset (Ontario): 1982 à 1986.

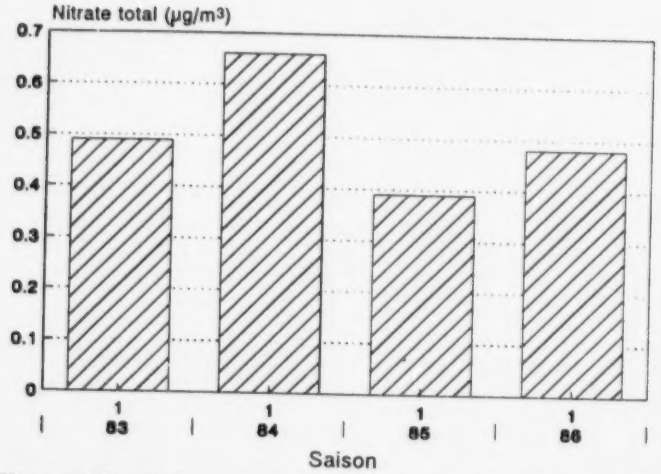


Figure 3F-49 Concentrations atmosphériques de tous les nitrates corrigées en fonction d'un facteur climatologique: hiver.

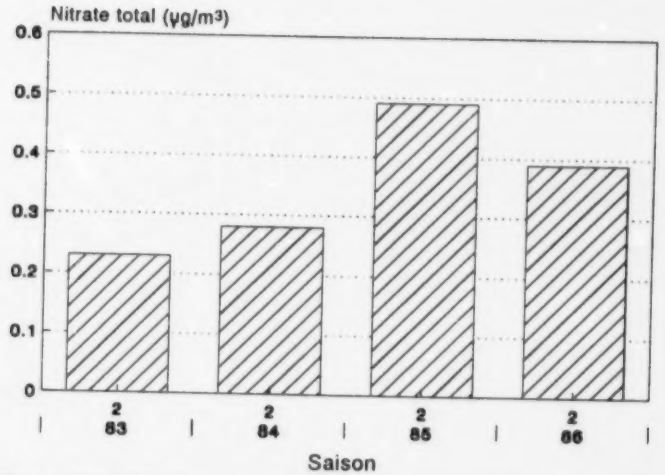


Figure 3F-50 Concentrations atmosphériques de tous les nitrates corrigées en fonction d'un facteur climatologique: printemps.

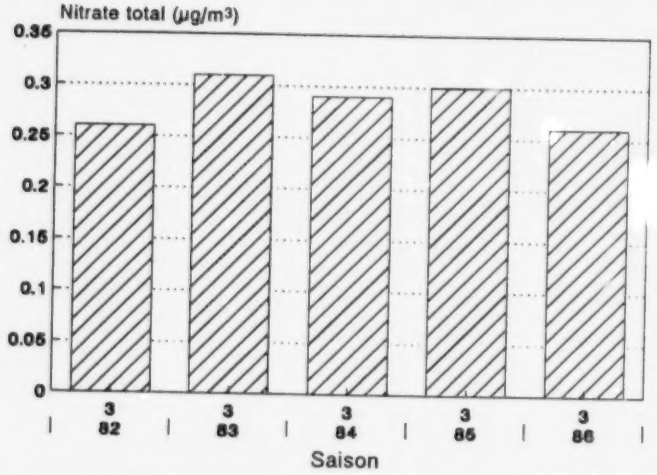


Figure 3F-51 Concentrations atmosphériques de tous les nitrates corrigées en fonction d'un facteur climatologique: été.

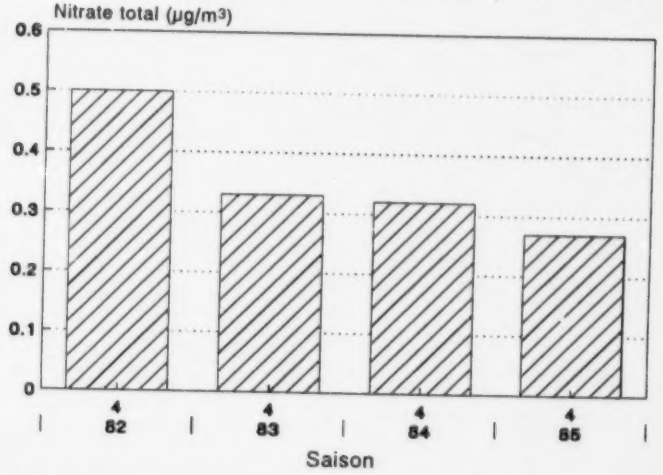


Figure 3F-52 Concentrations atmosphériques de tous les nitrates corrigées en fonction d'un facteur climatologique: automne.

ANNEXE 3G

UTILISATIONS DE SCÉNARIOS PRÉVUS PAR LES MODÈLES DE LAGRANGE

LISTE DES TABLEAUX DE L'ANNEXE 3G

TABLEAU n°		PAGE
3G-1	Les estimations des émissions utilisées pour déterminer l'effet du programme de contrôle des dépôts de sulfate et des courants transfrontaliers aux États-Unis.	3-380

LISTE DES FIGURES DE L'ANNEXE 3G

FIGURES n°		PAGE
3G-1	Prévisions des dépôts humides de $SO_4^=$ (kg $SO_4^=$/ha/année) par le modèle linéaire lagrangien OME pour les émissions de SO_2 de 1980. Les prévisions comprennent des dépôts de fond qui dépendent des précipitations.	3-381
3G-2	Prévisions des dépôts humides de $SO_4^=$ (kg $SO_4^=$/ha/année) par le modèle linéaire lagrangien OME tenant compte des émissions de SO_2 prévues au Canada pour 1994 et des émissions originales de 1980 aux É.-U. Les prévisions comprennent des dépôts de fond qui dépendent des précipitations.	3-381
3G-3	Prévisions des dépôts humides de $SO_4^=$ (kg $SO_4^=$/ha/année) par le modèle linéaire lagrangien OME tenant compte des émissions de SO_2 prévues au Canada pour 1994 et des émissions estimatives aux É.-U. fondées sur la réduction de 4,5 millions de tonnes d'ici 1995 décrite dans le projet de loi du président Bush. Les prévisions comprennent des dépôts de fond qui dépendent des précipitations.	3-382
3G-4	Prévisions des dépôts humides de $SO_4^=$ (kg $SO_4^=$/ha/année) par le modèle linéaire lagrangien OME tenant compte des émissions de SO_2 prévues au Canada pour 1994 et des émissions estimatives aux É.-U. fondées sur la réduction de 9,0 millions de tonnes d'ici l'an 2000 décrite dans le projet de loi du président Bush. Les prévisions comprennent des dépôts de fond qui dépendent des précipitations.	3-382

ANNEXE 3G

UTILISATIONS DE SCÉNARIOS PRÉVUS PAR LES MODÈLES DE LAGRANGE

L'étude de l'efficacité des programmes de contrôle canadiens et américains est basée sur les détaux de programmes de contrôle de SO_2 dans l'est du Canada, et le jugement de RMCC concernant la distribution de la diminution de 10 millions tonnes de SO_2 annoncée par le président Bush, en 1989. Les niveaux des émissions américaines sont utilisés pour prévoir les dépôts dus aux émissions à l'avenir (tableau 3G-1).

Le modèle lagrangien de trajectoires du ministère de l'Environnement de l'Ontario a été utilisé pour la prévision de quatre scénarios a) un scénario basé sur les émissions de 1980; b) un scénario basé sur les émissions de 1980 aux États-Unis et tenant compte de la réduction prévue au Canada pour 1994 conformément au programme "Les pluies acides : un compte à rebours"; et c) et d) les émissions au Canada réduites conformément au programme susmentionné et à la réduction prévue pour 1995 et l'an 2000 estimées d'après les réductions proposées par le président Bush de 4,5 millions de tonnes et de 9,0 millions de tonnes, respectivement. Ces utilisations du modèle ont produit une moyenne annuelle des dépôts humides de $SO_4^=$ qui sera utilisée pour l'évaluation des effets de ces dépôts sur le milieu aquatique.

Dans le modèle lagrangien de prévision des trajectoires des parcelles d'air des émissions continues provenant d'une source ponctuelle qui sont idéalisées par des parcelles d'air discrètes, lesquelles se déplacent le long de trajectoires variables en fonction du temps, qui suivent des vents géostrophiques de surface. Les trajectoires débutent à intervalles de trois heures, à partir de chacune des 182 sources ponctuelles représentatives de l'Amérique du Nord, situées à l'est des Rocheuses. Dans le cas de trois scénarios, le modèle a utilisé une moyenne annuelle des émissions de SO_2 et de la météorologie pour 1980. Les processus inclus dans le modèle sont : 1) l'expansion de la parcelle d'air lors de son transport par le vent; 2) la transformation chimique linéaire du SO_2 en $SO_4^=$;3) les dépôts secs de SO_2 et de $SO_4^=$; et 4) le lessivage du SO_2 et du $SO_4^=$. Le modèle est décrit dans Ellenton et al., (1985, 1988). Des évaluations du modèle en regard de la moyenne mensuelle mesurée des dépôts humides de $SO_4^=$ ont été effectuées dans le cas d'un certain nombre des stations de surveillance situés au Canada et aux É.-U. Les résultats ont montré un accord raisonnable avec la variabilité mensuelle des données mesurées.

Puisque le modèle n'utilise que les émissions anthropiques de SO_2 pour la région située à l'est des Rocheuse en Amérique du Nord, des dépôts humides de fond ont été ajoutés aux résultats. Les dépôts de fond de $SO_4^=$ ont été calculés à partir d'une concentration fixe dans les précipitations de 0,4 mg $SO_4^=$/l. Cette concentration a été multipliée par la quantité de précipitations annuelles à chaque maille de la grille pour produire des dépôts de fond variables. Ces dépôts sont dus aux émissions provenant de l'extérieur de la région étudiée et aux émissions naturelles à l'intérieur de ce domaine.

Les figure 3G-1, 3G-2, 3G-3 et 3G-4 présentent les graphiques des courbes de niveau produites par le modèle pour les dépôts humides de $SO_4^=$ dans le cas des 4 scénarios. D'après ces résultats, les réductions prévues au Canada pour 1994 produiraient une certaine diminution des dépôts humides de $SO_4^=$. La valeur maximale locale située au nord du lac Érié est disparue tandis que le prolongement nord de la courbe de niveau s'est rapproché du centre. Presque aucun changement n'a été observé ailleurs. Cependant, lorsqu'on réduit les émissions aux É.-U., la valeur maximale des dépôts humides est réduite de 45 kg $SO_4^=$/ha/année à 20 kg $SO_4^=$/ha/année. Cette réduction draconienne est accompagnée par un rétrécissement substantiel de la région touchée par les dépôts humides de $SO_4^=$. Les pourcentages de réduction ont ensuite été calculés en vue de leur utilisation dans la modélisation des effets aquatiques.

Tableau 3G-1

Les estimations des émissions utilisées pour déterminer l'effet du programme de contrôle des dépôts de sulfate et des courants transfrontaliers aux États-Unis.

Région	Émissions de SO_2 en 1980		1ère phase du Programme de Contrôle des É.-U. (5 million tons)		Programme de Contrôle des É.-U. (10 million tons)	
	Kilotons	Kilotonnes (métrique)	Kilotons	Kilotonnes (métrique)	Kilotons	Kilotonnes (métrique)
Ohio	2884	2616	2009	1822	1133	1028
Illinois	1537	1394	1070	971	604	548
Pensylvanie	1908	1730	1329	1205	749	680
Indiana	1922	1743	1338	1214	755	685
Michigan	896	813	688	624	479	435
Ouest de la Virginie	1150	1043	802	727	452	410
New-York	869	788	667	605	465	422
Wisconsin, Iowa	1186	1076	911	826	635	576
Minnesota	273	248	210	190	146	133
Maine	158	143	121	110	85	77
Vermont, N.Hampshire	120	109	93	84	64	58
Kentucky	1175	1066	1004	911	834	757
Tennesse	1158	1050	1072	972	986	894
Missouri	1295	1175	1200	1088	1103	1001
Alabama	841	763	778	706	717	650
Virginie, Caroline du Nord	1062	963	983	892	904	820
Floride	1226	1112	1136	1030	1044	947
Géorgie, Caroline du Sud	1249	1133	1156	1049	1064	965
Maryland, Delaware, New Jersey, D.C.	778	706	721	654	663	601
Arkansas, Louisiane, Mississipi	905	821	838	760	771	699
Mass., Conn., Rhode Island	435	394	402	365	374	336
États de l'Ouest	4763	4320	4262	3866	3763	3413
Total des États-Unis	27790	25206	22790	20671	17790	16135

SCÉNARIO 1

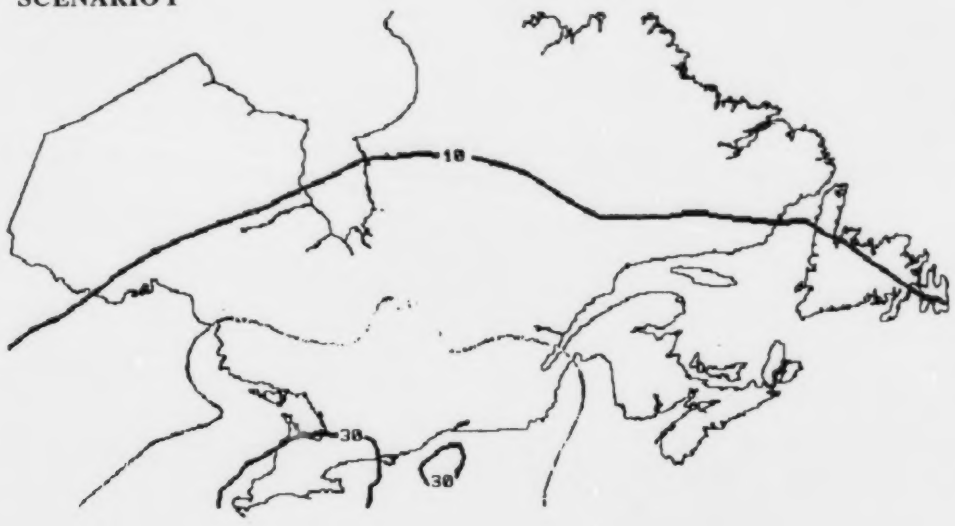


Figure 3G-1 Prévisions des dépôts humides de $SO_4^=$ (kg $SO_4^=$/ha/année) par le modèle linéaire lagrangien OME pour les émissions de SO_2 de 1980. Les prévisions comprennent des dépôts de fond qui dépendent des précipitations.

SCÉNARIO 2

Figure 3G-2 Prévisions des dépôts humides de $SO_4^=$ (kg $SO_4^=$/ha/année) par le modèle linéaire lagrangien OME tenant compte des émissions de SO_2 prévues au Canada pour 1994 et des émissions originales de 1980 aux É.-U. Les prévisions comprennent des dépôts de fond qui dépendent des précipitations.

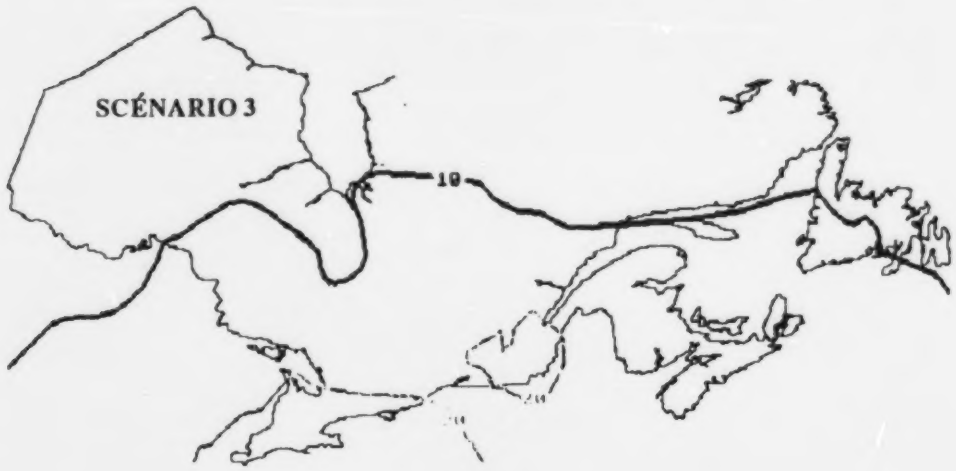


Figure 3G-3 Prévisions des dépôts humides de $SO_4^=$ (kg $SO_4^=$/ha/année) par le modèle linéaire lagrangien OME tenant compte des émissions de SO_2 prévues au Canada pour 1994 et des émissions estimatives aux É.-U. fondées sur la réduction de 4,5 millions de tonnes d'ici 1995 décrite dans le projet de loi du président Bush. Les prévisions comprennent des dépôts de fond qui dépendent des précipitations.

Figure 3G-4 Prévisions des dépôts humides de $SO_4^=$ (kg $SO_4^=$/ha/année) par le modèle linéaire lagrangien OME tenant compte des émissions de SO_2 prévues au Canada pour 1994 et des émissions estimatives aux É.-U. fondées sur la réduction de 9,0 millions de tonnes d'ici l'an 2000 décrite dans le projet de loi du président Bush. Les prévisions comprennent des dépôts de fond qui dépendent des précipitations.

RÉFÉRENCES

RÉFÉRENCES

Anlauf,K., Fellin, P., Wiebe, H.A., Schiff, H.L., Mackay, G.I., Braman, R.S. and Gilbert, R. 1985. A comparison of three methods for measurement of atmospheric nitric acid and aerosol nitrate and ammonium, Atmos. Environ. **19**, 325-333.

Anlauf, K., Olson, M., Wiebe, H.A. and Lusis, M. 1980. Atmospheric transport of particulate sulphate and ozone into the Toronto region and its correlation with visibility. Studies in Environmental Science **8**, 153-138.

Ashbaugh, L.L. 1983. A statistical trajectory technique for determining air pollution source regions. J. Air Poll.Control Assoc., **33**, 1096-1098.

Banic, C.M., Isaac, G.A., Cho, H.R. and Iribane, J.V. 1986. The Redistribution of Pollutants near a Frontal Surface: A Comparison Between Field Experiment and Modelling. Water, Air and Soil Pollution, **30**, 171-177.

Barchet, R.W. 1989. NAPAP Model Evaluation, Volumes 1 and 2. Prepared for USEPA, Atmospheric Research and Exposure Assessment Laboratory, Research Triangle Park NC, 27711.

Barchet, R.W. 1987. Acidic deposition and its gaseous precursors. Volume III, Chapter 5. The National Acid Precipitation Assessment Program Interim Assessment - The Causes and Effects of Acid Deposition. Office of the National Acid Precipitation Assessment Program, Washington, D.C.

Barrie, L.A. 1988. Aspects of atmospheric pollutant origin and deposition revealed by multielemental observations at a rural location in eastern Canada. J. Geophys. Res. **93**, 3773-3788.

Barrie, L.A. and Hales, J.M. 1984. The Spatial Distributions of Precipitation Acidity and Major Ion Wet Deposition in North America During 1980. Tellus **36B**, 333-355.

Barrie, L.A. and Schemenauer, R.S. 1989. Wet deposition of heavy metals. NATO Advanced Research Workshop on the Control and Fate of Atmospheric Heavy Metals, 12-16 September, Olso, Norway, in press.

Barrie, L.A. and Schemenauer, R.S. 1986. Pollutant wet deposition mechanisms in precipitation and fog water. Water, Air, Soil Pollut. **30**, 91-104.

Barrie, L.A., Wiebe, H.A., Fellin, P. and Anlauf, K. 1980. The Canadian Air and Precipitation Monitoring Network (APN): A description and results for November 1978 to June 1979. AQRB Internal Report # ARQB-80-002-T, Atmospheric Environment Service, 4905 Dufferin Street, Downsview, Ontario, Canada, M3H 5T4.

Beattie, B.L., and Whelpdale, D.M. 1989. Meteorological Characteristics of Large Acidic Deposition Events at Kejimkujik, Nova Scotia. Water, Air, Soil Pollut. **46**, 45-59.

Benkley, C.W. and Bass, A. 1979. User's Guide to MESOPUFF (Mesoscale PUFF Model). EPA 600/7-79, 141 pp.

Bhumralkar, C.M., Mancuso, R.L., Wolf, D.E. and Johnson, W.B. 1981. Regional Air Pollution Model for Calculating Short-Term (daily) Patterns and Transfrontier Exchanges of Airborne Sulfur in Europe. Tellus **33**, 142-161.

Références (suite)

Bottenheim, J.W., Brice, K.A. and Anlauf, K.G. 1984. Discussion of a Lagrangian Trajectory Model Describing Long-Range Transport of Oxides of Nitrogen, the Incorporation of PAN in the Chemical Mechanism and Supporting Measurements of PAN and Nitrate Species at Rural Sites in Ontario. Atmos. Envir. **18**, 2609-2619.

Bloxam, R.M., Misra, P.K. and Ley, B.E. 1986. Variable Washout Ratios in Langrangian Models. 2nd International Specialty Conference on Meteorology of Acidic Deposition. J.Laznow and G. Steusland, Eds. APCA Publication.

Buch, H., Pedersen, H.B and Sztokhamer, I.S. 1976. The variations of the concentrations of airborne particulate matter with wind direction and wind speed in Denmark. Atmos. Environ. **10**, 159-162.

Calvert, J.G. and Stockwell, W.R. 1984. Mechanism and Rates of the Gas Phase Oxidation of Sulphur Dioxide and the Nitrogen Oxides in the Atmosphere in SO_2, NO and NO_2 Oxidation Mechanisms: Atmospheric Considerations, Acid Precipitation Series, Volume 3, J.I. Teasley; Series Ed., Butterworth Boston.

Carmichael, G.R. and Peters, L.K. 1984. An Eulerian Transport/Transformation Removal Model for SO_2 and Sulfate. Atmos. Environ. **18**, 937-967.

Chan, W.H., Orr, D.B., Bardswick, W.S. and Vet, R.J. 1985. An Overview: The Cumulative Wet/Dry Deposition Network. Ontario Ministry of the Environment Report ARB-141-85-AQM.

Chang, J.S., Brost, R.A., Isaksen, I.S.A., Madronich, S., Middleton, P., Stockwell, W.R. and Walcek, C.J. 1987. A Three-Dimensional Eulerian Acid Deposition Model: Physical Concepts and Formulation. Geophys. Res. **92**, **14**, 681,700.

Chatfield, C. 1984. The Analysis of Time Series : An Introduction, Third Edition. Chapman and Hall, London, 286pp.

Ching, J.K.S. and Alkezweeny, A.J. 1986. Tracer Study of Vertical Exchange by Cumulus Clouds. J.Clim. & Appl. Meteorol. **25**, 1702-1711.

Chung, Y.S. 1977. Ground-level Ozone and Regional Transport of Air Pollutants, J. Appl. Meteorol., **16**, 1127-1136.

Clark, T.L., Denise, R.L., Seilkop, S.K., Voldner, E.C., Olson, M.P. and Alvo, M. 1987. Internation sulfur deposition model evaluation. Atmospheric Environment Service Publication No. ARD-87-1, 4905 Dufferin Street, Downsview, Ontario.

Cox, R.M., Spanold-Tims, J. and Hughes, R.N. 1989. Acid fog and ozone: their possible role in birch deterioration around the Bay of Fundy, Canada. Water Air and Soil Pollution, **481**, 263-276.

Crocker, T.D. and Regens, J.L. 1985. Acid Deposition Control. Environ. Sci.& Technol., **19**, 112-116.

Dann, T. 1988. Trends in Ambient Ozone Concentrations in Canada. Preprint, 81st Ann. Air Poll. Control Assoc. Meeting, Dallas, June 19-24.

Références (suite)

Davis, C.S., Moran, M.D., Portelli, R.V., Reid, N.W., Bates, D.V. and Scheer,D.B. 1984. Initial Assessment Report on Photo-chemical Oxidant Air Pollutants in Canada. Report Prepared by Concord Scientific Corporation for Environment Canada, Environmental Protection Service, April 1984.

Davis, C.S., Reid, N.W., Heidorn, K.C. and Ormrod, D.P. 1986. Oxidant Assessment Ontario Database-Phase I. Report Prepared by Concord Scientific Corporation for Environment Canada, 1986.

Demerjian, K.L. 1986. Workshop Report on Sources and Evaluation of Uncertainty in Long-Range Transport Models. Joint Report EPA/AES/OME. American Meteorological Society, 45 Beacon St. Boston, Mass. 01208.

Demerjian, K.L. 1985. Quantifying Uncertainty in Long-Range Transport Models. Bull. Amer. Met. Soc., Vol. 66 **12**, 1533-1540.

Dickerson, R.R., Huffman, G.J., Luke, W.T., Nunnermacker, L.J., Pickering, K.E., Leslie, A.C.D., Lindsey, C.G., Slinn, W.G.N., Kelly, T.J., Daum, P.H. Delany, A.C., Greenberg, J.P. Zimmerman, P.R., Boatman, J.F., Ray, J.D. and Stedman, D.H. 1987. Thunderstorms: An Important Mechanism in the Transport of Air Pollutants. Science **235**, 460-465.

Dillon, P.J., Lusis, M.A., Reid, R. and Yap, D. 1988. Ten-year trends in sulphate, nitrate and hydrogen deposition in central Ontario. Atmos. Environ. **22**, 901-905.

Draxler, R.R. and Hefter, J.L., 1989, Eds. Across North America Tracer Experiment (ANATEX) Volume I: Description, ground - level sampling at primary sites, and meterology. NOAA Tech. Memorandum ERL ARL-167. Air Resources Lab., Silver Spring, MD, USA. 83pp.

Dutkiewicz, V.A. Parekh, P.P. and Husain, L. 1987. An evaluation of regional elemental signatures relevant to the Northeastern United States, Atmos. Environ. **21**, 1033-1044.

Eder, B.K., Coventry, D.H., Clark, T.L. and Bollinger, C.E. 1986. RELMAP: A Regional Lagrangian Model of Air Pollution, User's Guide. EPA Report EPA/600/8-86/013.

Eliassen, A. 1980. The OECD Study on Long Range Transport of Air Pollutants: Long Range Transport Modelling, Atmos. Environ. **12**, 479-487.

Eliassen, A., Hov, O., Isaksen, I.S.A., Saltbones, J. and Stordal, F. 1982. A Lagrangian Long-Range Transport Model with Atmospheric Boundary Layer Chemistry. J. Appl. Met. **21**, 1645-1661.

Eliassen, A. and Saltbones, J. 1983. Modelling of Long-Range Transport of Sulphur over Europe: A Two-Year Model Run and Some Model Experiments. Atmos. Environ., **17**, 1457-1473.

Eliassen, A. and Saltbones, J. 1975. Decay and Transformation Rates of SO_2 as Estimated from Emissions Data, Trajectories and Measured Air Concentrations. Atmos. Environ., **9**, 425-429.

Ellenton, G., Misra, P.K. and Ley, B. 1988. The Relative Roles of Emission Changes and Meteorological Variability in Variations of Wet Sulphur Deposition: A Trajectory Model Study. Atmos. Environ. **22**, 547-556.

Références (suite)

Ellenton, G., Ley, B. and Misra, P.K. 1985. A Trajectory Puff Model of Sulphur Transport for Eastern North America. Atmos. Environ., **19**, 727-737.

Endlich, R.M., Nitz, K.C., Brodziwsky, R. and Bhrumralkar, C.M. 1983. The ENAMAP-2 Air Pollution Model for Long Range Transport of Sulphur and Nitrogen Compounds, EPA Report 600/7-83-059, 217 pp.

EPA. 1988. National Air Quality and Emissions Trends Report, 1986. USEPA Report No. EPA-450/4-88-001.

EPRI. 1984. Regional Air Quality Model Assessment and Evaluation, Report EPRI EA-3671.

ERT. 1985. Development of a Model for the Transport and Deposition of Acidifying Pollutants, ERT No. P-B866-450. Environmental Research and Technology Inc., Newsbury Park, Ca. 91320.

ERT. 1984. ADOM/TADAP Model Development Programs, Vols. 1-7. ERT No. P-B980-535, July 1984. Environmental Research and Technology Inc., Newsbury Park, CA. 91320.

Faulkner, D.A. 1987. The Effect of a Major Emitter on the Rain Chemistry of Southwestern British Columbia. Report No. PAES 68-1. Atmospheric Environment Service, Vancouver, Canada.

Fay, J.A., Golomb, D., and Kumar, S. 1986. Annual and semi-annual anthropogenic dulphur budget for eastern North America, Atmos. Environ. **20**, 1497-1500.

Fay, J.A., Golomb, D. and Kumar, S. 1985. Source Apportionment of Wet Sulphate Deposition in Eastern North America. Atmos. Environ. **19**, 1773-1782.

Fay, J.A., Golomb, D. and Zemba, S.G. 1989. Observed and modeled trend of sulphate and nitrate in precipitation in eastern North America. Atmos. Environ. **23**, 1863-1866.

Fay, J.A. and Rosenzweig, J.J. 1980. An Analytical Diffusion Model for Long Distance Transport of Air Pollutants, Atmos. Environ. **14**, 355-365.

Ferber, G.J. (Editor). 1985. Cross-Appalachian Tracer Experiment (CAPTEX) Operations Review, NOAA Technical Memorandum ERL ARL-138, Air Resources Laboratory, Silver Spring, MD, USA.

Ferber, G.J., Hefftes, J.L., Draxler, R.R., Lagomarsino, R.J., Thomas, F.L., Dietx, R.N., and Benkovitz, C.M. 1986. Cross-Applachian Traces Experiment ('83) Final Report. NOAA Tech. Mem. ERL ARL-142, January, 1986, 60 pp.

Fernau, M. and Samson, P.J. 1986. The Effect of Meteorological Variability on Targeted Emission Control Strategies. Paper presented at the Second International Specialty Conference on Meteorology of Acidic Deposition, Albany, New York. March. 418 pp.

Finlayson-Pitts, B.J., and Pitts, J.N. 1986. Atmospheric Chemistry. John Wiley and Son.

Fisher, B.E.A. 1978. The Calculation of Long Term Sulphur Deposition in Europe, Atmos. Environ. **12**, 489-501.

Fisher, B.E.A. 1975. The Long Range Transport of Sulphur Dioxide. Atmos. Environ. **9**, 1063-1070.

Références (suite)

Forland, E.J. 1973. A study of the acidity in the precipitation in southwestern Norway. Tellus **25**, 291-299.

Fung, C., Misra, P.K., Bloxam, R. and Wong, S. 1989. Non-linear Response of $SO_4^=$ in Precipitation to Emission Reduction: A Model Study. Reprints of the Sixth Joint Conference on Applications of Air Pollution Meteorology. Jan 30-Feb.3, 1989. Anaheim, CA, p. 11-14.

Galloway, J.N., Likens, G.E., and Hawley, M.E. 1984. Acid Precipitation: Natural versus arthropogenic components, Science **226**, 829-831.

Galloway, J.N., and Whelpdale, D.M. 1987. WATOX-86 Overview and Western North Atlantic ocean S and atmospheric budgets. Global Biogeochemical Cycles **1**, 261-281.

Galloway, J.N., and Whelpdale, D.M. 1980. An atmospheric sulfur budget for eastern North America. Atmos. Environ. **14**, 409-417.

Haagenson, P.L., Kuo, Y.H. and Skumanich, M. 1987. Tracer Verification of Trajectory Models. J. of Clim. and Appl. Meteor. **26**, 410-426.

Heidorn, K. and Yap, D. 1986. A Synoptic Climatology for Surface Ozone Concentrations in Southern Ontario, 1976-1981. Atmos. Environ. **20**, 695-703.

Heisler, S.L., Sellars, F.M. and Mosbley, J.D. 1986. Comparison of the 1980 NAPAP and 1982 EPRI Emission Inventories - Preliminary Results. Air Pollution Control Association Annual Meeting, Minneapolis, Minnesota.

Hidy, G.M. 1984. Source-Receptor Relationships for Acid Deposition: Pure and Simple? A Critical Review, J. Air Poll. Control Assoc. **34**, 518-531.

Hollander, M. and Wolfe, D.A. 1973. Nonparametric Statistical Methods. John Wiley and Sons, New York, 503 pp.

Hopper, J.F. and Barrie, L.A. 1988. Regional and background aerosol trace elemental composition observed in eastern Canada. Tellus **40B**, 446-462.

Isaac, G.A., Joe, P.I. and Summers, P.W. 1983. The Vertical Transport and Redistribution of Pollutants by Clouds. Proceedings of the APCA Specialty Conference on Meteorology of Acid Deposition, Hartford, Conn. 496-512.

Kahl, J.D., Harris, J.M., Herbert, G.A. and Olson, M.P. 1989. Intercomparison of Three Long-Range Trajectory Models Applied to Arctic Haze. Tellus, in press.

Kelly, N.A., Ferman, M.A. and Wolff, G.T. 1986. The Chemical and Meteorological Conditions Associated with High and Low Ozone Concentrations in Southeastern Michigan and Nearby Areas ofOntario. J. Air Pollut. Control Ass. **36**, 150-158.

Kroll, G. and Winkler, P. 1989. Trace substances input to coniferous forests via cloud interception. Mechanisms and Effects of Pollutant-Transfer into Forests, H.W., Georgii (ed.), Kluwer Academic Publishers, 205-211.

Références (suite)

Kurtz, J., Tang, A.J.S., Kirk, R.W. and Chan, W.H. 1984. Analysis of an acid rain deposition episode at Dorset, Ontario. Atmos. Environ. **18**, 387-394.

Kurtz, J., Yap, D., Bloxam, R., Shenfeld, L. and Kiely, P. 1989. The Impact of Longe Range Transport on Oxidant Levels -The Southern Ontario Situation, Seminar on the Contemporary Oxidant Problem, Vancouver, February 27-28.

Lamb, R.G. 1985. A Regional Scale (1000 km) Model of Photochemical Air Pollution 3. Tests of Numerical Algorithms. Report, Off. of Res. and Dev., Environ. Sci. Res. Lab., USEPA, Research Triangle Park, N.C.

Lamb, R.G. 1983. A Regional Scale (1000 km) Model of Photochemical Air Pollution 2. Input Processor Network Design. Report, Off. of Res. and Dev. Environ. Sci. Res. Lab., USEPA, Research Triangle Park, N.C.

Lamb, R.G. 1982. A Regional Scale (1000 km) Model of Photochemical Air Pollution 1. Theoretical Formulation. Report, Off. of Res. and Dev., Environ. Sci. Res. Lab., USEPA, Research Triangle Park, N.C.

Liu, M.D., Stewart, D.A. and Henderson, D. 1981. A Mathematical Model for the Analysis of Acid Deposition, System Application Inc. San Rafael, Ca.

Lovett, G.M. 1984. Rates and mechanisms of cloud water deposition to a subalpine balsam fir forests. Atmos. Environ. **18**, 361-371

Lowenthal, D.H. and Rahn, K.A. 1988. Discussion of an evaluation of regional elemental signatures relevant to the Northwestern United States. Atmos. Environ. **22**, 609-616.

Lusis, M.A., Anlauf K.G., Chung Y.S. and Wiebe H.A. 1976. Aircraft O_3, measurements in the vicinity of Toronto, Canada. Preprint, 69th Ann. Air Poll. Control Assoc. Meeting, Portland,76-7-1.

Lusis, M.A., Sahota, H. and Yap, D. 1985. The Sarnia Oxidants Study (27 June - 18th July 1984): Analysis of the air quality and meteorological data. MOE Report ARB-124-85-AQM.

Mathews, T. 1987. Manual of the National Atmospheric Chemistry Contouring System (NAtCon). Atmospheric Environment Service, 4905 Dufferin St., Downsview, Ontario.

McCormick, W.J., Fung, C.S., and Alp, E. 1989. Evaluation of ADOM Using ANATEX Observations. Concord Scientific Corporation Report J1464.2, Downsview, Ontario.

MDI., voir MOI.

Miller, R.G. Jr. 1981. Simultaneous Statistical Inference. Second Edition, Springer-Verlag, New York, 300pp.

Misra, P.K., Bloxam, R., Fung, C., and Wong, S. 1989. Non-linear response of Wet Deposition to Emissions eduction: A Model Study. Atmos. Environ. **23**, 671-687.

Références (suite)

Mohnen, V.A. 1988. Mountain Cloud Chemistry Project. Report to U.S. Environmental Protection Agency, AREAL, Research Triangle Park, N.C. 27711. Contact Number CR 813934-01-2, pp. 32.

MOI. 1982a. Emissions, Costs and Engineering Assessment. Work Group 3B. U.S.-Canada Memorandum of Intent on Transboundary Air Pollution, Final Report, June 1982.

MOI. 1982b. Atmospheric Sciences and Analysis, Work Group 2. Modelling Subgroup Final Report 2F-M. US-Canada Memorandum of Intent November 1, 1982.

MOI. 1982c. United States-Canada Memorandum of Intent on Transboundary Air Pollution Report No. 2F-1.

Mukammal, E.I., Neumann, H.H. and Gillespie, T.J. 1982. Meteorological Conditions Associated with Ozone in South-western Ontario, Canada. Atmos. Environ. **16**, 2095-2106.

Mukammal, E.I., Neumann, H.H. and Nichols, T.R. 1985. Some Features of the Ozone Climatology of Ontario, Canada and Possible Contributions of Stratospheric Ozone to Surface Concentrations. Arch. Met. Geoph. Biocl. **Ser. A 34**, 179-211.

Munn, R.E. 1973. Secular Increases in Summer Haziness in the Atlantic Provinces. Atmosphere **11**, 156-161.

National Academy of Sciences. 1983. Jack Calvert et al Editors. Acid Deposition, Atmospheric Process in Eastern North America. A Review of Current Scientific understanding. National Academy Press, Washington, D.C.

NAPAP. 1985. Annual Report, 1985. National Acid Precipitation Assessment Program, Washington, D.C.

NAPAP. 1989. Deposition Monitoring: Methods and Results. State of Science/Technology Report 6. National Acid Precipitation Assessment Program, Washington, D.C.

Olson, M.P. 1989. Authors' Reply to Discussion on Interannual Variability of Transboundary Sulphur Flux. Atmos. Environ. **23**, 2864-2867.

Olson, M.P. and Oikawa, K.K. 1989. International Variability of Transboundary Sulphur Flux. Atmos. Environ. **23**, 333-340.

Olson, M.P., Bottenheim, J.W. and Oikawa, K.K. 1989a. Nitrogen Budget for Eastern Canada. Atmos. Environ., in press.

Olson, M.P., Puckett, K.J., Davies, D. and Oikawa, K.K. 1989b. A comparison between the ADOM Model and the ANATEX Tracer Data. Presented at Association of Chemical Engineers Conference, San Francisco, Nov. 1, 1989.

Olson, M.P., Voldner E.C., and Oikawa K.K. 1983. Transfer Matrics from the AES-LRT Model. Atmosphere-Ocean **21 Vol. 3**, 344-361.

Olson, M.P., Oikawa, K.K. and MacAfee, A.W. 1978. A Trajectory Model Applied to the Long-Range Transport of Air Pollutants, LRTAP 78-4, Atmospheric Environment Service, Downsview, Ontario.

Références (suite)

Pacyna, J.M. 1986. Source-receptor relationships for trace elements in northern Europe. Water, Soil and Air Poll. **30**, 825-835.

Pinard, P. 1989. Deux indicateurs de performance environmentales concernant l'acidite des precipitations. Rapport M-89-3, Direction de la meteorologie, ministere de l'Environment du Quebec.

Poirot, R.L. and Wishinski, P.R. 1986. Visibility, sulfate and air mass history associated with the summertime aerosol in northern Vermont. Atmosph. Environ. **20**, 1457-1469.

Pudykiewicz J. 1988. Numerical Formulation of the Transport of Radioactive Cloud from the Chernobyl Nuclear Accident. Tellus **40B**, 241-259.

Raatz, W.E., and Shaw, G.E. 1984. Long-range transport of pollution aerosols into the Alaskan Arctic. J. Clim. Appl. Met. **23**, 1052-1064.

Rahn, K.A. and Lowenthal, D.H. 1985. Pollution aerosols in the Northeast: northeastern and midwestern contributions. Science **228**, 275-284.

Rahn, K.A., and Lowenthal, D.H. 1984. Elemental Tracers of Distant Regional Pollution Aerosols. Science **223**, 132-139.

Rahn, K.A. 1982. On the causes, characteristics and potential environmental effects of aerosol in the Arctic atmosphere. Proc. Conf. on the Arctic Hydrographic Environment and the Fate of Pollutants, pp. 163-195.

Rahn, K.A., and Heidam, N.Z. 1981. Progress in Arctic air chemistry, 1977-1980: a camparison of the first and second symposia. Atmosph. Environ. **15**, 1345-1348.

Rahn K.A. 1976. The chemical composition of the atmospheric aerosol. Technical Report, Graduate School of Oceanography, University of Rhode Island, Kingston, RI.

Reinmuth, M. 1977. Time Series, in Modern Elementary Statistics. Freund, J.E. (Ed). Prentice Hall Press, New York, pp 605-655.

RMCC 1986. Assessment of the State of Knowledge on the Long-Range Transport of Air Pollutnats and Acid Deposition: Part 2 Atmospheric Sciences, Federal/Provincial Research and Monitoring Co-ordinating Committee, August, 1986, 108 pp.

Rodhe, H. and Grandel, H. 1972. On the Removal Time of Aerosol Particles from the Atmosphere by Precipitation Scavenging. Tellus **24**, pp.442-454.

Rodhe, H. and Herrera, R. 1988. Acidificator in tropical countries. Scope 36. John Wiley & Sons.

Rodhe, H., Persson, C. and Akesson, O. 1972. An investigation into regional transport of soot and sulphate aerosols. Atmos. Environ. **6**, 675-693.

Samson, P. 1978. Ensemble trajectory analysis of summertime sulfate concentrations in New York State. Atmosph. Environ. **12**, 1889-1893.

Références (suite)

Samson, P.J. 1989. Aggregation of Pollutant Deposition Episodes into Seasonal and Annual Estimates. The University of Michigan Department of Atmospheric, Oceanic and Space Studies Report.

Samson, P.J. and Keeler, G.J. 1987. Empirical evidence of source-receptor relationships for atmospheric pollutants. Proc. EMEP-Workshop on Data Analysis and Presentation. Cologne, FRG. 15-17 June 1987, 221-236.

Schemenauer, R.S. 1986. Acidic deposition to forests: The 1985 Chemistry of High Elevation Fog Project. Atmosphere-Ocean **24**, 303-328.

Schemenauer, R.S., Schuepp, P., Kermasha, S. and Cereceda, P. 1988. Measurements of the properties of high elevation fog in Quebec, Canada. NATO Advanced Research Workshop: Acid Deposition Processes at High Elevation Sites, D. Reidel Publ., 359-374.

Schemenauer, R.S. and Winston, C. 1988. The 1986 Chemistry of High Elevation Fog Project, Air Pollution Control Association, 81st Annual General Meeting, 20-14 June, 88-129.6, 1-16.

Schwartz, S.E. 1982. Gas Aqueous Reactions of Sulphur and Nitrogen Oxides in Liquid-Water Clouds, in SO_2, NO and NO_2 Oxidation Mechanisms: Atmospheric Conditions, ed. J.G. Calvert, Ann Arbor Science, Woburn, M.A.

Schwartz, S.E. and Daum, P.H. 1988. Sulphur Dioxide - Hydrogen Peroxide Relationships in Clean Air, Clouds and Precipitation, Presented at the American Chemical Society Meeting in Toronto, Canada. June 5-11. p.4.

Scire, J.S., Lurmann, F., Bass, A. and Hanna, S. 1984. User's Guide to the MESOPUFF II Model and Related Processor Programs. U.S. EPA 600/58-84-013.

Scire, J.S., Lurmann, F., Bass, A. and Hanns, S. 1983. Development of the MESOPUFF II Dispersion Model. U.S. EPA.

Seinfeld, J.H. 1980. Lectures in Atmospheric Chemistry, American Institute of Chemical Engineers, Monograph Series 12, Volume 76, 1980, 98 pp.

Shannon, J.D. 1981. A Model of Regional Long-Term Average Sulphur Atmospheric Pollution, Surface Removal and Net Horizontal Flux. Atmos. Environ. **15**, 689-701.

Shannon, J.D. and Lesht, B.M. 1986. Modeled Trends and Climatological Variability of the Net Transboundary Flux of Airborne Sulphur Between the United States and Canada. Internat. Specialty Conference, Albany N.Y., March 1986.

Shenfeld, L., Yap, D. and Kurtz, J. 1978. Long-range Transport of Ozone into and Across Southern Ontario, Canada. Conference on the Long-Range Transport of Photochemical Oxidants, Oslo, September 1978.

Sirois, A. 1990. The effects of missing data on the calculation of precipitation-weighted-mean concentration in wet deposition. Atmos. Environ., in press.

Sirois, A. and Barrie, L.A. 1988. An estimate of the importance of dry deposition as a pathway of acidic

Références (suite)

substances from the atmosphere to the biosphere in eastern Canada. Tellus 40B, 59-80.

Smith, F.B. 1981. The Significance fo Wet and Dry Synoptic Regions on long-Range Transport of pollution and its Deposition. Atmos. Environ. **15**, 863-873.

Smith, F.B. and Hunt, R.D. 1978. Meteorological aspects of the transport of pollution over long distances. Atmos. Environ. **12**, 461-477.

Spicer, C.W. 1983. Smog Chamber Studies of NO Transformation Rates in Nitrate Precursor Relationship. Environ. Sci. & Technol. **17**, p.112.

Spicer, C.W. and Holdren, M. 1983 Laboratory Studies of the Rates and Mechanism of NO_x Reaction in Known Urban Air. Paper presented at the CACGP symposium on Tropospheric Chemistry. Oxford, U.K. Aug. 28-Sept. 3.

Stockwell, W.R., and Calvert, J.G. 1983. The Mechanism of the HO-SO_2 reaction. Atmos. Environ. **17**, 2231-2236.

Strauss, B., Martin, D. and Cuillier, C. 1986. Une methode nouvelle en climatologie de trajectoires de masses d'air. Proc. Seventh World Clean air Congress, Sydney Australia, 25-29 Aug. 1986, Vol. I, 326-333.

Streets, D.G., Lesht, B.M., Shannon, J.D. and Veselka, T.D. 1985. Climatological Variability - Effects on Strategies to Reduce Acid Deposition. Environ. Sci.& Technol. **19**, 887-893.

Sturges, W.I. and Barrie, L.A., 1989. The use of stable lead 206/207 isotope ratios and elemental composition to discriminate the origins of lead in aerosols at a rural site in eastern Canada. Atmos. Environ. **23**, 1645-1657.

Summers, P.W. 1987. Empirical source-receptor relationships in Eastern Canada determined from monitoring data and air-mass trajectory climatologies. Proc. EMEP-Workshop on Data Analysis and Presentation. Cologne, FRG, 15-17 June 1987, 165-192.

Summers, P.W. 1984. Discussion of G. Hidy's Critical Review of Source-Receptor Relationships, J. Air Poll. Control Assoc. **34**, 906-911.

Summers, P.W., 1982. From emission to deposition: Processes and Budgets. Proc. Specialty Conf. on Atmospheric Deposition. Air Pollution Control Association Report Sp-49.

Summers, P.W. and Fricke, W. 1989. Atmospheric decay distances and times for sulphur and nitrogen oxides estimated from air and precipitation monitoring in eastern Canada. Tellus **41B**, 286-295.

Summers, P.W. and Olson, M.P. 1985. A Comparison between AES-LRTAP Model Trajectories and Observed Tracer Concentrations during CAPTEX-83. Presented at the Muskoka 85 Acid Rain Conference, September 1985. Atmospheric Environment Service, Downsview, Ontario.

Tang, A.J.S., Ahmed, A. and Lusis, M.A. 1986. Summary: Some results from the APIOS Atmospheric Deposition Monitoring Program (1981-1984). Report No. ARB-110-86, AP105. 011-86, Ont. Ministry of Environment.

Références (suite)

Underwood, J.K., Ogden, III, J.G., Kerekes, J.J., and Vaughan, H.H. 1987. Acidification of Nova Scotia Lakes.III: Atmospheric Deposition of SO_4 and NO_3 and Effects on Urban and Rural Lakes. Water, Air, and Soil Pollut. **32**, 77.

Unified Deposition Data Base Committee (UDDBC). 1985b. A unified wet deposition data base for Eastern North America: Data Screening, Calculation Procedures, and results for sulphates and nitrates (1980) and Addendum with results for sulphates and nitrates (1980-1983). Edited by M. Lusis, Ontario Ministry of the Environment, 880 Bay Street, Toronto, Ont.

Vachon, M. 1988. Analyses statistiques de l'evolution temporelle des precipitations acides au Quebec. Memoire de maitrise, Faulte des Etudes superieures, Universite de Montreal.

Venkatram, A., Karamchandi, P.K., and Misra, P.K. 1988. Testing a Comprehensive Acid Deposition Model. Atmos. Environ. **22**, 737-747.

Venkatram, A., Ley, B.E., and Wong, S.Y. 1982. A Statistical Model to Estimate Long-Term Concentrations of Pollutants Associated with Long-Range Transport. Atmos. Environ. **16**, pp. 249-257.

Venkatram, A., McNaughton, D., Karamchandi, P., Shannon, J., Sisterson, D., and Fernau, M. 1989. State of the Science Document - 8. Relationships between Atmospheric Emissions and Deposition/Air Concentrations. National Acid Precipitation Assessment Program. Draft Report.

Vet, R.J., Sukloff, W.B., Still, M.E. and Gilbert, R., 1986. Canadian Air and Precipitation Monitoring Network (CAPMoN): Precipitation Chemistry Data Summary, 1983-1984. Air Quality Monitoring and Assessment Division, Air Quality and Inter-Environmental Research Branch, Atmospheric Environment Service, 4905 Dufferin Street, Downsview, Ontario, M3H 5T4.

Vet, R.J., Sukloff, W.B., Still, M.E., Martin, J.B., Kobelka, W.F. and Gaudenzi, A. 1988a. Canadian Air and Precipitation Monitoring Network (CAPMoN): Precipitation Chemistry Data Summary, 1985. Air Quality Monitoring and Assessment Division, Air Quality and Inter-Environmental Research Branch, Atmospheric Environment Service, 4905 Dufferin Street, Downsview, Ontario, M3H 5T4.

Vet, R.J., Sukloff, W.B., Still, M.E., Martin, J.B., Kobelka, W.F. and Gaudenzi, A. 1988b. Canadian Air and Precipitation Monitoring Network (CAPMoN): Precipitation Chemistry Data Summary, 1986. Air Quality Monitoring and Assessment Division, Air Quality and Inter-Environmental Research Branch, Atmospheric Environment Service, 4905 Dufferin Street, Downsview, Ontario, M3H 5T4.

Vet, R.J., Sukloff, W.B., Still, M.E., McNair, C.S., Martin, J.B., Kobelka, W.F. and Gaudenzi, A. 1989. Canadian Air and Precipitation Monitoring Network (CAPMON): Precipitation Chemistry Data Summary, 1987. Air Quality Monitoring and Assessment Division, Air Quality and Inter-Environmental Research Branch, Atmospheric Environment Service, 4905 Dufferin Street, Downsview, Ontario, M3H 5T4.

Vogelmann, H.W. 1982. Catastrophe on Camels Hump. Natural History **91**, 8-14.

Voldner, E.C., Barrie, L.A. and Sirois, A. 1986. A Literature Review of Dry Deposition of Oxides of Sulphur and Nitrogen with Emphasis on Long-Range Transport Modelling in North America. Atmos. Envion. **20**, 2101-2123.

Références (suite)

Voldner, E.C. and Olson, M.P. 1982. Analysis of Transfer Matrices. Report AQRB-82-004-T. Atmospheric Environment Service, Downsview, Ontario. M3H 5T4.

Voldner, E.C., Olson, M.P., Oikawa, K.K. and Loiselle, M. 1981 Comparison Between Measured and Computed Concentrations of Sulphur Compounds in Eastern North America. J. Geophys. Res. **86**, 5334-5346.

Vong, R.J., Moseholm, L., Covert, D.S., Sampson, P.D., O'Loughlin, J.F., Stevenson, M.N., Charlson, R.J., Zoller, W.H., and Larson, T.V. 1988. Changes in rainwater acidity associated with closure of a copper smelter. J. Geophys Res., 93, 7169-7179.

Walmsley, J.L. and Mailhot, J. 1983. On the Numerical Accuracy of Trajectory Models for Long-Range Transport of Atmospheric Pollutants. Atmos.-Ocean **21**, 14-39.

Yap, D. and Chung, Y.S. 1977. Relationship of Ozone to Meteorological Conditions in Southern Ontario. Preprint, 70th Ann. Air Poll. Control Assoc. Meeting, June 20-24, Toronto.

Yap, D., Ning, D.T. and Dong, W. 1988. An Assessment of Source Contributions to the Ozone Concentrations in Southern Ontario, Atmos. Environ. **22**, 1161-1168.

Young, J.W.S. 1988. Source-Receptor Relationships: The Canadian Experience. In: Acid Rain: The Relationship Between Sources and Receptors. J.C. White (Ed.), pp. 151-163.

Young, J.W.S. and Shaw, R.W. 1986. A Proposed Strategy for Reducing Sulphate Deposition in North America - I. Methodology for Minimizing Sulphur Removal, Atmos. Environ. 20, 189-199.

Zeng, Y., and Hopke, P.K. 1989. A study of the sources of Acidic precipitation in Ontario, Canada. Atmos. Environ. **23**, 1499-1509.

Zimmerman, D., Tak, W., Smith, M., Demmy, J. and Battye, R. 1988. Anthropogenic Emissions Data for the 1985 NAPAP Inventory. U.S. EPA, Report # EPA-600/7-88-022.